



TITLE:

bcc固体 ^3He の低磁場秩序相における核スピン緩和機構の研究(
Dissertation_全文)

AUTHOR(S):

佐々木, 豊

CITATION:

佐々木, 豊. bcc固体 ^3He の低磁場秩序相における核スピン緩和機構の研究. 京都大学, 1991, 理学博士

ISSUE DATE:

1991-01-23

URL:

<https://doi.org/10.11501/3052560>

RIGHT:

学位申請論文

佐々木 豊

bcc 固体 ^3He の低磁場秩序相における
核スピン緩和機構の研究

佐々木 豊

概略

bcc 固体 ^3He の低磁場秩序相において cw-NMR の実験を行った。(1) 吸収線幅の解析を通じて低磁場秩序相の核スピン緩和機構が 3-マグノン過程および 4-マグノン過程に支配されていることを明らかにした。(2) NMR イメージングの手法を用いて結晶中の磁区の分布を調べた。磁区の大きさは結晶の大きさと同程度であり、一結晶中にはたかだか数個の磁区があることがわかった。また格子が 10^3 のオーダーで歪んでいる可能性があることも指摘した。(3) 共振周波数を精密に測定することによって反強磁性周波数 ν_0 に磁場依存性があることを示した。(4) 特別な試料から共振周波数のネガティブシフトを観測した。

目次

I. 序章

1

II. 核スピンの運動方程式とその微分振動解

4

III. 実験装置と実験の手順

III-1. 冷凍装置

8

III-2. 試料固体 ^3He の作成装置と測定装置

8

III-3. 試料固体 ^3He の作成

11

IV. 吸収線幅の測定結果と解析

IV-1. 測定された線幅の磁場・温度依存性の特徴

13

IV-2. 試料の体積による吸収線幅の変化

16

IV-3. 多重マグノン過程によるスピン緩和の理論

20

IV-4. 理論と実験との定量的な比較

26

IV-5. 議論

29

V. 磁区構造とその分布

33

VI. 反強磁性固溶数 ρ_0 の磁場依存性と核磁場シフト

37

VII. まとめ

42

謝辞

43

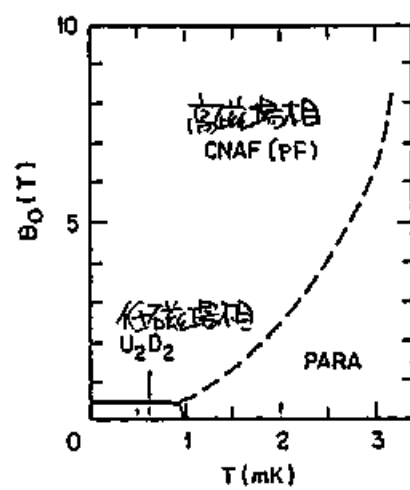
参考文献

44

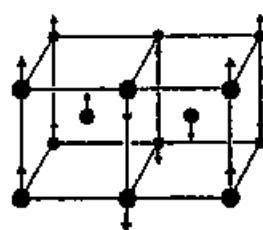
I. 序章

固体 ^3He はどのような原子間相互作用、軽い質量に基づく大きな零点振動のため著しい量子性を示し、量子固体と呼ばれることもある。この固体は低密度状態ではbcc構造を持ち、約1mKという超低温度に至るまでは常磁性状態を保っているが、より低い温度では反強磁性相に相転移することが知られている。(図1) この反強磁性相は約4kOe以上の高磁場下ではさらに擬強磁性相(pseudo ferromagnetic phase)と呼ばれる非常に大きな自旋磁化を持った反強磁性相へと相転移する。これらの秩序状態は固体 ^3He の量子性を反映した非常に大きな核スピンの交換相互作用に基づくもので、交換相互作用の特徴を反映した特殊なスピン構造をとっている。(図2) Osheroff⁵⁾はcw-NMR法による共鳴周波数の磁場変化の様子から低磁場相が一軸異方性を持った反強磁性相であることをつまとめ、そのスピン構造が $U_N D_N$ と呼ばれる強磁性的にスピンのそろったUp面Down面がN枚ずつ(100)軸方向に並んでいる構造をとっていることを提唱した。彼らはさらに核スピン間の双極子相互作用に基づく異方性磁場の大きさより $N=2$ の状態である可能性が最も高いと指摘した。この彼らの推定は後にBenoit^{5a)}による中性子散乱の実験により確かめられ、この低磁場相は $U_2 D_2$ スピン構造をとっているものと理解されている。

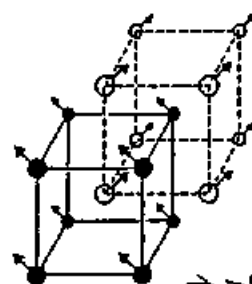
この低磁場秩序相における核スピンの運動方程式は先のスピン構造の推定とともにOsheroff⁵⁾によって提唱され、彼らの名をとってOCF方程式と呼ばれている。この運動方程式はcw-NMRによる共鳴周波数の磁場依存性などをよく説明しているのであるが、エネルギーも保存するためスピン緩和についての情報は得ることができない。楠本^{5a)}は大振幅運動時のスピン系の運動状態、スピン緩和機構などを調べるためパルスNMR法による実験を行った。彼らはパルスNMRのテッパ角を大きくしていくと次第に自由誘導減衰信号が短くなることを発見した。このような現象は通常のブロッホ方程式などで支配される系では予期されぬことで、OCF方程式内の非線形項が大きく寄与しているものと考えられる。坪田^{5a)}はOCF方程式内の非線形項に寄与する大振幅パルスの後のカオス的運動状態を調べた。彼らは現象論的にOCF方程式に導入した緩和項を使って、大振幅運動時にスピン系がカオス状態へ移行し、この時緩和の時間定数がカオス状態になる前より短くなることを



(四 1)



(a) 低磁場相



(b) 高磁場相

(四 2)

示した。この研究において彼らが導入した緩和項は超流動 $^3\text{He-A}$ のスピン緩和を記述するとされている Leggett-Takagi の緩和項と同じ形をしており、
又方の運動方程式の形式上の類似より類推して導入されたものである。大見⁽⁶⁾
は OCF 方程式に勾配項を導入して空間一様な磁化の運動の安定性について
議論した。その結果大振幅の磁化運動は不安定となり空間均一な状態から
不均一な状態へと移行することが示された。また坪田⁽⁷⁾は U_2D_2 スピン構造
をとった状態での磁区構造および磁壁でのスピン波の透過について議論した。
 U_2D_2 構造では (100) 軸も異方軸とするため 3 つの直交した方向の異方軸を持つ
磁区が存在する。これらが共存する場合最もエネルギーの低い磁壁は (110) 面⁽⁸⁾
あることが示され、またこの面では長波長のスピン波はほぼ完全に反射することが
示された。このことは多磁区構造をとっている隣接磁区への磁化の流出という形の
磁気緩和は起きにくいことを示している。これらの数多くの理論的考察の結果は
楠本らの実験結果を定性的に説明することができたが、実験上または理論上の制
約のため結果を定量的に比較することが困難であった。また微小振動状態の
内部的なスピン緩和機構についての研究も不十分であり実験・理論共に知見
を得る必要がある。そこで cw-NMR により吸収線幅を測定し内部的な
緩和機構について研究することにした。

II. 核スピンの運動方程式とその微小振動解

低磁場秩序相は Up, Up, Down, Down の4つの副格子によって記述される反強磁性相であるが, NMRにより知られる状態では Up 副格子と Down 副格子とを同じ運動をすることが期待され事実上, スピン $S=1$ の Up, Down の二副格子で記述されるものと考えよい。このスピン系に対する有効ハミルトニアンは大見ら⁽⁸⁾によって次のように与えられている。

$$H = \frac{\gamma^2}{2\chi} \vec{S} \cdot \vec{S} - \gamma \vec{S} \times \vec{H} + \frac{\chi}{2\gamma^2} \Omega_0^2 (\hat{d} \cdot \hat{\ell})^2 + \frac{\chi}{2\gamma^2} \{ (C_{\perp} \hat{d})^2 + (C_{\parallel} \hat{d})^2 \} \quad (1)$$

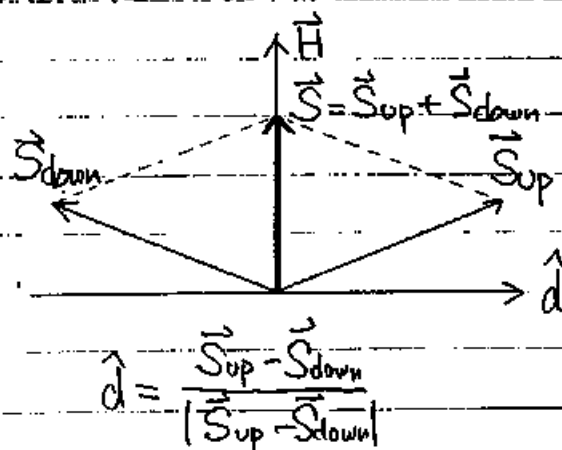
ここで \vec{S} は磁化, \vec{H} は外部磁場, \hat{d} は副格子磁化を規格化したもの, $\hat{\ell}$ は磁気異方性軸 (100), γ は ^3He の磁気回転比, χ は横帯磁率, Ω_0 は双極子相互作用の大きさを与える特徴的な周波数で反強磁性周波数とみられる。また C_{\perp}, C_{\parallel} は各々 $\hat{\ell}$ に垂直, 平行な方向のスピン波速度, v_{\perp}, v_{\parallel} も同じ方向への空間微分である。このハミルトニアンの第一～三項は超流動 ^3He の有効ハミルトニアンである Leggett ハミルトニアンと同じ形をしている。第一項は交換エネルギー, 第二項はゼーマンエネルギー, 第三項は双極子エネルギーを表している。第四項は系のオーダーパラメータである副格子磁化の空間変化に対する勾配項である。超流動 ^3He の場合にはその自由度の多さに起因してさらに別種の勾配項があらわれるが固体 ^3He の低磁場秩序相の場合にはこの項のみである。

図3に諸量の定義の概略を示す。

定義から明らかのように熱平衡状態では $\hat{d} \perp \vec{H}$ となっている。また双極子エネルギー

$$E_D = \frac{\chi}{2\gamma^2} \Omega_0^2 (\hat{d} \cdot \hat{\ell})^2$$

より熱平衡状態では $\hat{d} \perp \hat{\ell}$ となっている。またバルクの状態では当然ながら $\nabla \hat{d} = 0$ となっていることが期待される。



(図3)

この有効ハミルトニアン[2]と交換関係

$$[\vec{S}_i, \vec{S}_j] = i\epsilon_{ijk} \vec{S}_k$$

$$[\vec{S}_i, \hat{d}_j] = i\epsilon_{ijk} \hat{d}_k$$

[2]

を組み合わせると運動方程式を導出することができて

$$\dot{\vec{S}} = \gamma \vec{S} \times \vec{H} - \frac{\chi}{r^2} \Omega_0^2 (\hat{d} \cdot \hat{l}) (\partial \times \hat{l}) + \frac{\chi}{r^2} \hat{d} \times (C_L^2 \nabla_L^2 \hat{d} + C_T^2 \nabla_T^2 \hat{d}) \quad [3]$$

$$\dot{\hat{d}} = \gamma \hat{d} \times (\vec{H} - \frac{\gamma}{\chi} \vec{S})$$

[4]

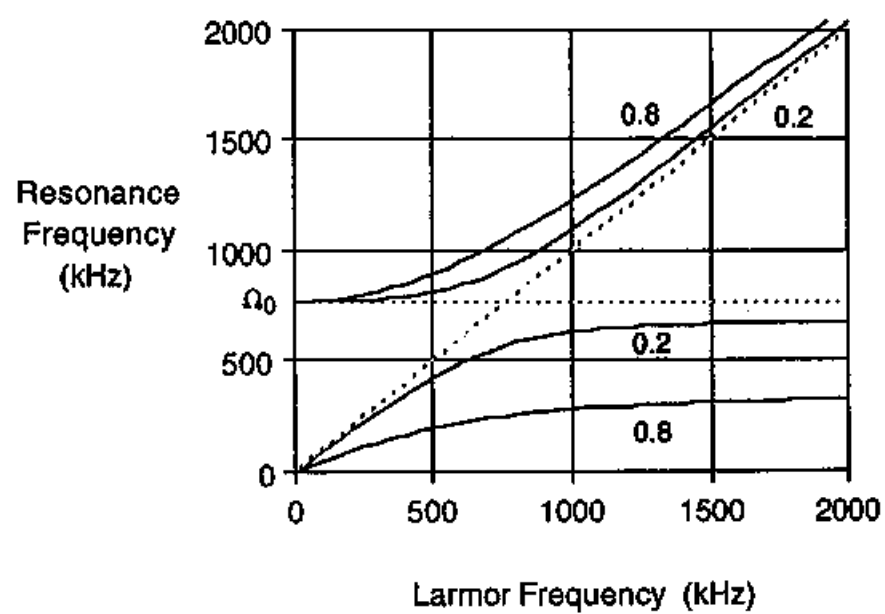
となる。この運動方程式は[3]第三項の勾配項をのぞいては OCF 方程式と全く同じである。この方程式を平衡状態 $\hat{d} \perp \vec{H}$, $\hat{d} \perp \hat{l}$, $\vec{S} \parallel \vec{H}$, $\nabla \hat{d} = 0$ のまわりの微小振動条件下で線形化して解くと系の共鳴周波数 ω_{\pm} を求めることができる。

$$\omega_{\pm}^2 = \frac{1}{2} \left\{ \omega_L^2 + \Omega_0^2 \pm [(\omega_L^2 - \Omega_0^2)^2 + 4\omega_L^2 \Omega_0^2 \cos^2 \theta]^{1/2} \right\} \quad [5]$$

ここで $\omega_L = \gamma H$ は外部磁場のラーマ-周波数、角度 θ は異方軸 \hat{l} と外部磁場 \vec{H} のなす角を表す。 \pm の記号は2種のモードを表し $+$ は upper mode, $-$ は lower mode と呼ばれるモードに対応している。図4にこの各モードの共鳴周波数を外部磁場の関数として示す。図中 0.2, 0.8 は各々 $\cos^2 \theta = 0.2$, $\cos^2 \theta = 0.8$ に対して計算されたものを示している。図からみてわかるように upper mode では零磁場においても有限の共鳴周波数 Ω_0 を持ち、外部磁場が強くなるにつれて共鳴周波数は大きくなっていく。高磁場領域 ($\omega_L \gg \Omega_0$) では

$$\omega_{+} = \omega_L + \frac{\Omega_0^2}{2\omega_L} \cos^2 \theta$$

と近似される。一方 lower mode では零磁場では共鳴周波数も 0 となり、外部磁場が強くなるにつれて共鳴周波数は大きくなっていき、高磁場領域 ($\omega_L \gg \Omega_0$) では $\omega_{-} = \Omega_0 \sin \theta$ に漸近していく。この2つのモードは磁化の才差運動と縦磁化の振動との混ざり合ったものとして理解することができる。磁化の才差運動は外部磁場のまわりの ω_L の回転運動と考えられ、縦磁化の振動は内部磁場である双極子磁場による縦振動と考えられる。実際の運動はこの二種が混ざり合ったもので $\cos^2 \theta$, ω_L の値に応じてその混合状態は変化する。upper mode では高磁場下 ($\omega_L \gg \Omega_0$) ではほぼ磁化の才差運動となっているのに対し低磁場下 ($\omega_L \ll \Omega_0$) では $\theta \approx 0$ ($\hat{l} \parallel \vec{H}$) のとき磁化の才差



(㉔)

運動、 $\theta = \frac{\pi}{2}$ ($\hat{\ell} \perp \vec{H}$) のとき縦磁化の振動となっている。一方、lower mode では低磁場下 ($\omega_c \ll \omega_0$) では運動はほぼ磁化の才差運動となっているのに対し高磁場下 ($\omega_c \gg \omega_0$) では $\theta = \frac{\pi}{2}$ ($\hat{\ell} \perp \vec{H}$) のとき縦磁化の振動、 $\theta = 0$ ($\hat{\ell} \parallel \vec{H}$) のときは縦磁化の振動と磁化の才差運動との混合状態となっている。このように外部磁場の値や異方軸の方向による運動の状態が大きく変るため、もし双極子相互作用に結びついたスピン緩和機構があるならば、upper mode では低磁場、 $\propto \cos^2 \theta$ 、lower mode では高磁場、 $\propto \cos^2 \theta$ のときに顕著に働くことが予想される。

III 実験装置と実験の手順

III-1 冷凍装置

前述のように固体 ^3He の低磁場秩序相は約1mKという非常に低い転移温度を持っている。かように低い転移温度を持つ物質の性質を調べるためには1mK以下の超低温度を長時間に渡り保持できる高性能な冷凍装置が必要となる。今回の実験においては現有の大型希釈冷凍機に取り付けた銅の核断熱消磁装置を使用した。この装置は最低到達温度8mKの連続運転可能な冷凍装置である希釈冷凍機(SHE社製)に超伝導熱スイッチを介して接続された高純度銅製の核ステージおよび8Tの強磁場を発生する超伝導マグネットよりなる。1mK以下の最低温度に到達する手順は以下の通りである。

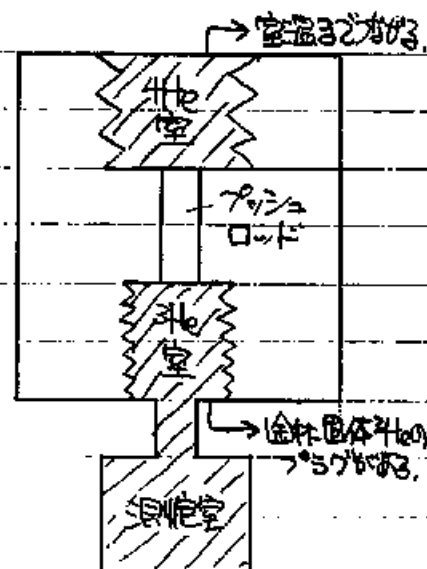
- (1) 核ステージ部(銅線をたばねて作られた層中にちなんだ核バンドルと呼ばれることがある)に8Tの強磁場をかけ超伝導熱スイッチを導通状態にしてまず希釈冷凍機により冷却する。現有の装置では5日間ほど核ステージの温度を10mKまで冷やすことができる。
- (2) 超伝導熱スイッチを非導通の状態にしてから核ステージにかけた強磁場をゆっくりと小さくしていく。この消磁のスピードは磁場変化による渦電流のための誘発生も低くおさえるため、超低温度における長い熱緩和時間に対処するための理由で0.5 T/hour ~ 0.2 T/hourの値が選ばれている。
- (3) 最低磁場0.1 Tに到達したところで核ステージの温度は200 μ K以下になっているものと推定される。この状態で1mK以下の温度を約10日間保持することができる。この期間は核ステージへの熱流入の大きさに依存し、現有の装置では数nWの定常的な熱流入があることがわかっている。この熱流入を低くおさえることがより低い温度に到達するための鍵となるが、今回の実験のためには現状で問題はない。

III-2 試料固体 ^3He の作成装置と測定装置

^3He は常圧下では絶対零度においても液体の状態を保ち、固体にするためには約34 barの圧力をかけなければならない。そのため試料の固体 ^3He は超低温下において実験装置内で生成しなければならない。また固体 ^3He は比較的大きな比熱を持ち、固体状態の ^3He を大きな固りのままに超低温まで冷却するには非常に困難を供するということがわかってる。そのため今回は液体の状態を転移温度以下にまで冷却

し、その後で圧力をかけて固化させるという方法をとることにした。しかし ^3He の融解圧曲線は約300mKで極小値をとり、より低温度ではより高い融解圧になるため、室温まで繫った配管を通し試料中の圧力を調節して固体を作ることはできない。そこで通常ポムランチュウセルまたはコンプレッションセルと呼ばれる静水圧増幅器を用いた。その模式図を図5に示す。

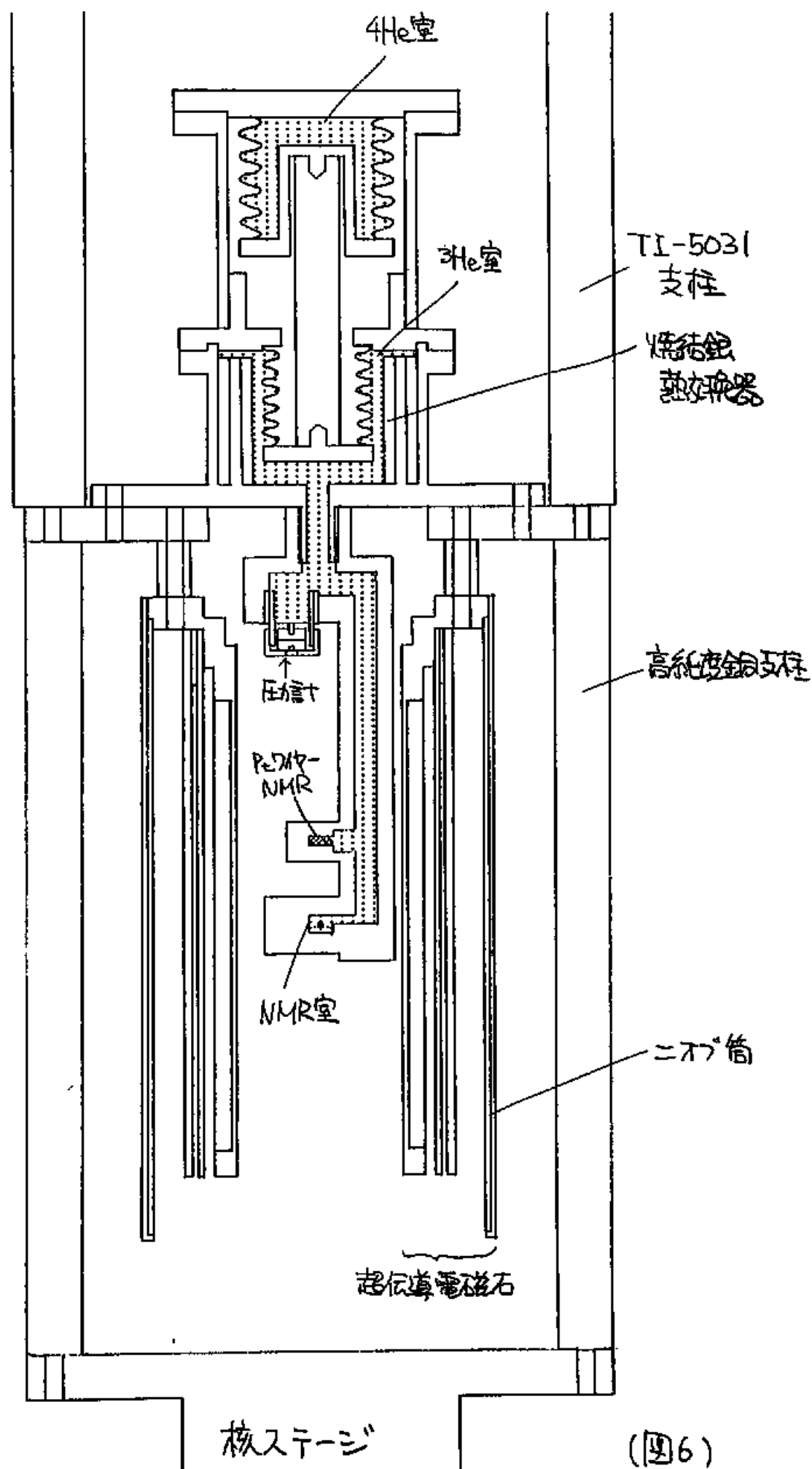
直径のちがう2つのパワーズがプッシュロッドを介して接続されており、大口径側に低圧の液体 ^4He 、小口径側に融解圧の極小値よりは高い圧力で閉じこめられた液体 ^3He が入っている。 ^3He の出入口は室温部までの間に完全に固体 ^3He となる領域(温度300mKをやりこめて)があるので事実上定積状態となっているが ^4He は液体または気体状態であるため室温側より圧力を操作することが出来る。この状態で ^4He の圧力を上げるとプッシュロッドに押されて ^3He 室の容積が小さくなり圧力が上昇する仕組みとなっている。具体的な



(図5)

構造は図6に示されている。図中の ^3He 室の中には直径700Åの微粒子銀を焼結することにより作られた熱交換器(表面積 200m^2)が入れられてあり、 ^3He と

金属の間の大きな界面熱抵抗を乗り越えて液体 ^3He を1mK以下の超低温度へと冷却することが出来る。このポムランチュウセル本体は高純度銅で作られ同じ高純度銅で作られた支柱を通して核ステージに接続されている。このポムランチュウセルの下部にはエポキシ樹脂(スチカスト1266)で作られた ^3He セルが取り付けられている。このセルの最下部には半円柱状の形状をしたNMR室がありその水平な床の上に試料となる固体 ^3He を生成して測定を行った。また液体 ^3He の温度測定用のPt 100 -NMR温度計はその上部に約1cm離れておかれている。また圧力測定用の容量型圧力計は ^3He セルの上部にとりつけられている。この ^3He セルのまわりにはNMR用の静磁場発生用の小型超伝導磁石が取り付けられている。この磁石は外部磁場遮蔽用の超伝導体ニオブの筒とその外部に持ち、核断熱装置用の強磁場からの漏れ磁場によりNMR用の均一な静磁場が包まれることになっている。また電磁石は5種の巻線よりなり、一番内側には均一磁場発生用の外1/4付ソレノイドコイルが巻かれている。さらにその外側には $\frac{\partial H_z}{\partial x}$, $\frac{\partial H_z}{\partial y}$, $\frac{\partial H_z}{\partial z}$, $\frac{\partial H_z}{\partial z^2}$ の空間依存性



を持った補正用コイルが差かれている。(ここで Z はソレノイドの軸方向を、 X, Y は各々 それに直交した方向を表す。) これらの補正コイルに流す電流を調整することによりソレノイドコイルにより作られた磁場の不均一度を増すことができる。この調整後の磁場の不均一度は 3mm 中 $\times 4\text{mm}$ の NMR 室の内部で低磁場状態では 40ppm 、高磁場状態では 10ppm となった。この磁場の不均一度は実際に今回の実験で測定された固体 ^3He の線幅と比べて十分に小さくその影響は無視できる。この電磁石全体は熱伝導度の低い物質である TI-5031 (東シ)⁽¹⁰⁾ を介して ポンプチャンセルに接続され、熱的には希釈冷凍機の混合室に接続されている。このようなデザインをとることにより、核スピンが最低温度にある状態でもそれに影響を与えずに NMR 用磁場の大きさを変更することができた。NMR の測定は通常の QMC-方式の cw-NMR で行った。NMR コイルのインダクタンスは $25\mu\text{H}$ であり室温部にコンデンサー またはコイルを並列につけることにより 200kHz から 16MHz の非常に広範囲な共鳴周波数域を得ることができた。この回路の Q 値は 1MHz で約 10 である。吸収信号の測定は磁場掃引および周波数掃引の両方を適宜適用した。周波数掃引に際しては電気回路内の共鳴などによるブースト信号の発生に特に注意した。また磁場掃引により吸収線幅を測定した場合には [5] 式より計算した共鳴周波数の磁場の配 $\frac{\partial \omega}{\partial H}$ をかけて正しい吸収線幅になるよう補正した。

III-3 試料固体 ^3He の作成

試料固体 ^3He は次のような手順で作成した。まず、転移温度での融解圧より数百 mbar 低圧の液体 ^3He を断熱消磁装置を用いて約 0.5mK まで冷却し、ポンプチャンセルを用いて液体 ^3He を加圧。融解圧より約 1 mbar 高い圧力になったところで、(この状態では過昇圧液体となっている。) ^3He NMR 用のコイルに約 1 erg の DC パルス電流を流す。この電流によるジュール発熱でコイルの温度が上昇し、周辺のスタットスの壁を経て最終的には NMR 室内の液体 ^3He の温度を上昇させることになる。これにより固体 ^3He の生成が NMR 室内で開始される。DC パルスを入れてから数秒後の状態を cw-NMR により観測するとコイル内に生成した固体はラーマー周波数付近に大きな共鳴吸収をもち常磁性状態であることがわかった。この常磁性固体の信号は時定数 10 分のオーダーで弱まっていき、また周囲より冷えて秩序状態へと転移を起していって、約 1 時間放置して常磁性状態の信号が消失したところで固体をいったん溶かして小さくし約 0.1mm^3

になったところから再び加圧して固体を生長させなおす。このときの圧力は融解圧より数百 μbar 上の圧力で、この圧力をより高くすると後述する方法で評価する固体の質が悪くなるということが実験的にわかっている。こうして固体を大きく 3mm^3 まで生長させる。この方法により内部にヒューズのような余分な壁を持たず、また自由表面を最大限に持った固体を生成することができ、このことは熱平衡状態にある固体の内的な緩和過程を研究するために重要なことである。

こうして生成した固体 ^3He の質を評価するため CW-NMR によって吸収スペクトルを観測する。大抵の場合には 3 種の互いに直交した \vec{J} 軸を持つ磁区が共存しておりラマ-マ周波数より高い周波数の信号 3 本が観測される。(これは前述の upper mode に対応している。) この各々の信号の吸収波形を詳細に見ると、時々いくつかのピークが重なったような形状をいくつかの信号が得られることがある。そのような信号が得られた場合 CW-NMR により形状を観察しながら固体を溶かしていくと、ある時忽然とピークのうちの 1 つが消失する。一度消失したピークはその後再び固体を生長させても二度と復活してくることはなかった。このようにして 3 磁区から 2 磁区に信号がすべて 1 ピークからなるものになるまで溶かしたり再生長させたりを繰り返す。こうして最終的に得られる信号は元のもの compared と線幅が狭くまた固体の大きさの変化に対して可逆的になり、内的な緩和過程の大きさを反映したものになっていると考えられる。このような固体について吸収線幅を温度、磁場、方位角を変えて測定した。

IV 吸収線幅の測定結果と解析

IV-1 測定された線幅の磁場・温度依存性の特徴

図7に典型的な線幅の磁場依存性を示す。このデータは $\cos^2\theta = 0.22$ の試料から $T = 0.68 \text{ T}$ のときにとられたもので、(T_N は転移温度で約 0.93 mK) 図中 \square は upper mode からとられた線幅、 \circ は lower mode からとられた線幅を示し、曲線は目安のために引かれたものである。upper mode からとられた線幅は磁場の増加に対してほぼ単調に減少するという特徴を持っている。一方、lower mode からとられた線幅の磁場依存性は2つの領域に分けて見ることができる。まず(1)中央部(図中の記号II: $500 \text{ kHz} < \omega_L < 1100 \text{ kHz}$ の領域)では線幅は磁場の増加に対してほぼ単調に増加するという特徴を持つ。そして(2)周辺部(図中の記号I: $\omega_L < 500 \text{ kHz}$, 記号III: $1100 \text{ kHz} < \omega_L$ の2領域)では境界($500 \text{ kHz}, 1100 \text{ kHz}$)から離れるにつれて線幅が急激に増加するという特徴をもつ。

図8は同じ試料からとった線幅の磁場変化を3種の温度に対して示したものである。図8(a)は upper mode の線幅、図8(b)は lower mode の線幅であり、

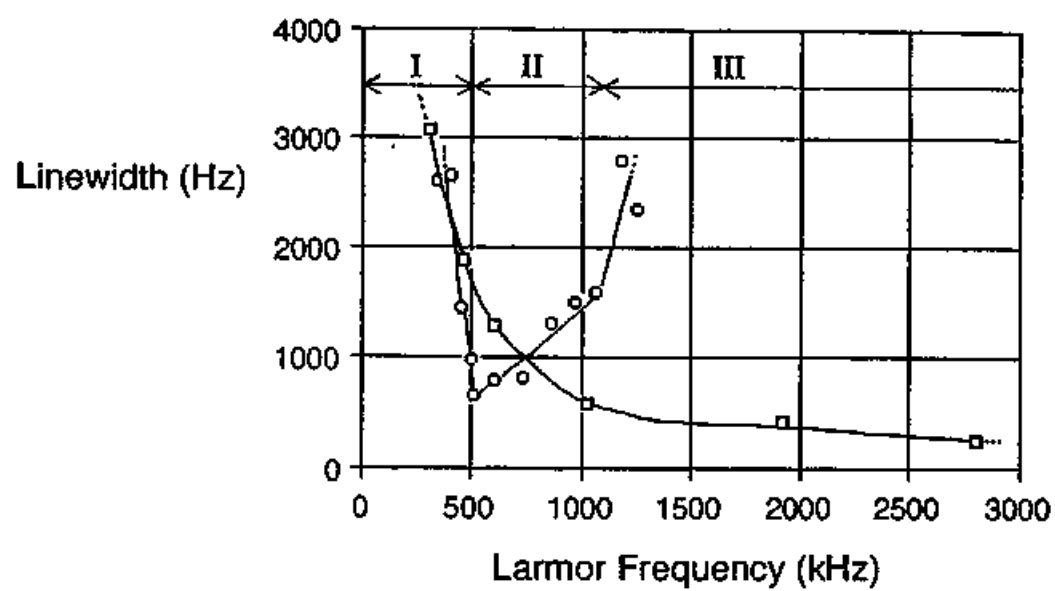
\diamond は $T = 0.80 \text{ T}$, \square は $T = 0.68 \text{ T}$, \circ は $T = 0.58 \text{ T}$ にとられたものを表す。これらの点を結んで引かれた曲線は目安のために引かれたものである。いずれのモードの場合でも線幅の磁場依存性の形はほとんど変わらず、ただ大きさが温度に対して単調に増加していることが見てとれる。

これらの磁場・温度依存性の特徴は $\cos^2\theta$ の大きな試料からとられた upper mode の線幅の磁場・温度依存性の特徴と一致している。線幅は磁場に対して単調に減少し、温度に対しては単調に増加する。lower mode については $\cos^2\theta$ が大きい場合図4に示されているようにその共鳴周波数が低く共鳴信号を観測するに十分な感度を得ることができなかった。

以上の結果をまとめると、

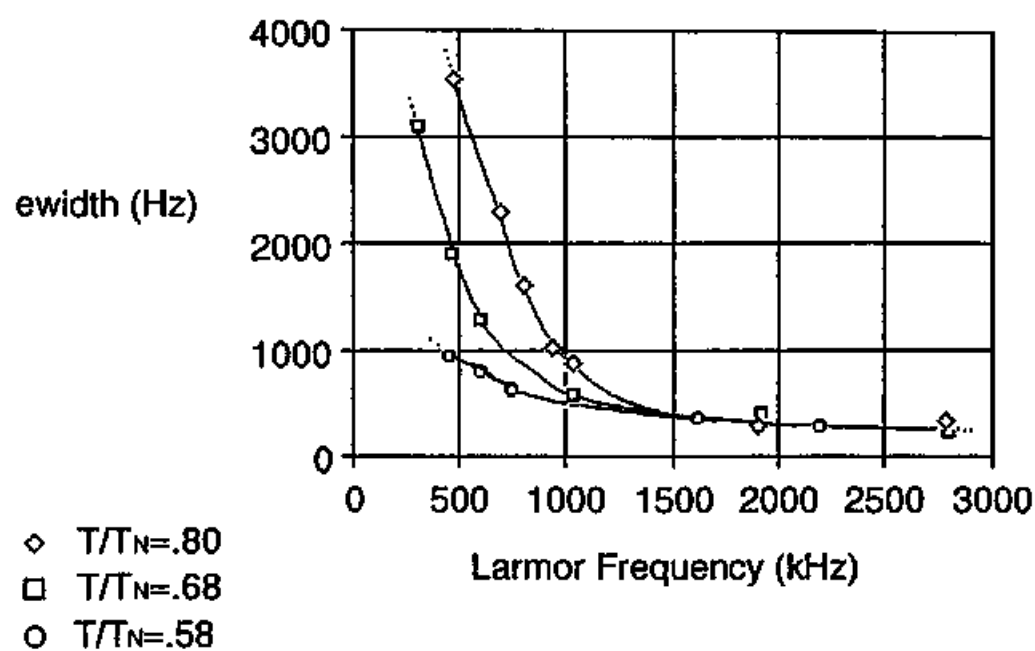
(1) upper mode では $\cos^2\theta$ の値にかかわらず線幅は磁場に対してほぼ単調に減少した。また線幅は温度に対してほぼ単調に増加した。

(2) lower mode では $\cos^2\theta$ の値が小さいとき ($\cos^2\theta \lesssim 0.2$) にのみ吸収信号を観測することができ、その場合の磁場依存性は2つの磁場領域に分けて見ることができた。中央部($\omega_L \approx \omega_0$ の領域、図7ではIIに相当)では磁場に対して単調に線幅が増加した。一方周辺部(図7ではI, IIIに相当)では、

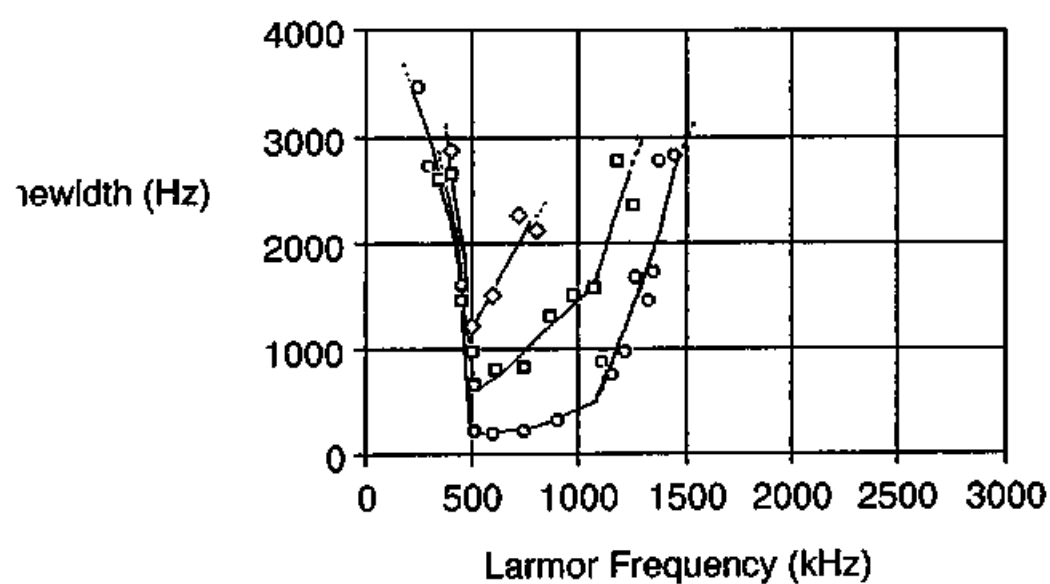


(图 7)

Upper Mode (a)



Lower Mode (b)



(28)

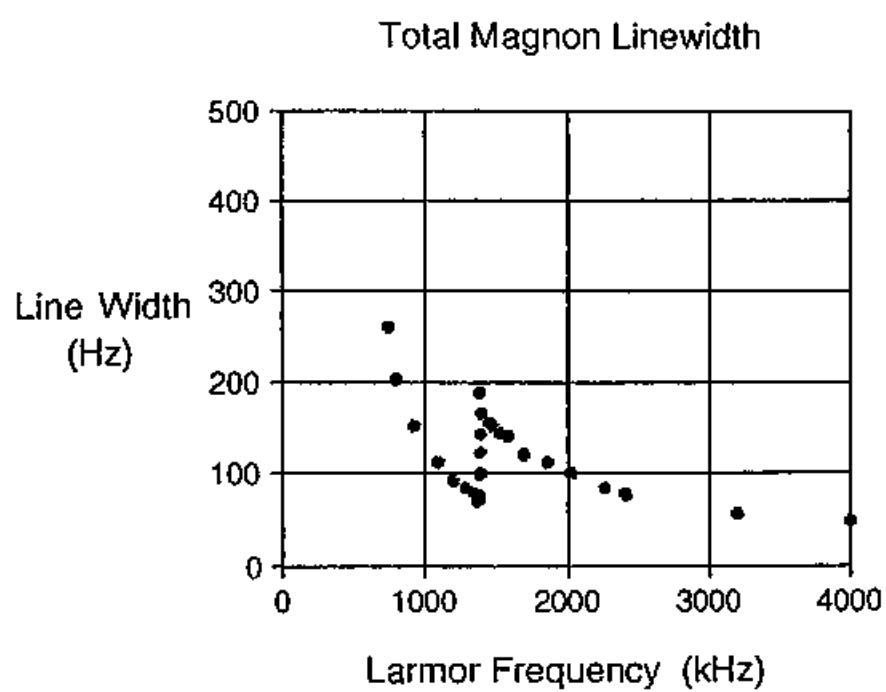
中央部との境界から離れるにつけ急激に線幅が増加した。温度変化に対してはこの磁場依存性の特徴は変化せず、ただ温度に対してほぼ単調に線幅が増加した。

次に特殊な例を示す。図9は $\cos^2\theta = 0.097$ の試料から $T = 0.57 \text{ TN}$ において5枚の upper mode での線幅の磁場変化を示している。図から明らかなように $\omega_c = 1400 \text{ kHz}$ 付近で急激な線幅の変化がみられた。図2は不連続に線幅が変化しているように見てとれるが、低磁場側と高磁場側とで吸収曲線の形が変化していたため見かけ上不連続に見えるのではないかと考えられる。このような線幅の急激な変化は他の試料の upper mode よりもこれとデータには顕著には見られなかった。この現象は前述の lower mode における周回部での線幅の増減と同様の原因によるものではないかと考えられるが、なぜこの試料の場合だけ観測され、他の試料では観測されなかったのかは不明である。ただこの試料は他の試料と違って 1 mbar 以上の余分な圧力をかけても生長することがなく、その体積は約 0.1 mm^3 と他の試料の $1/30$ の大きさでしかなかった。このことが何らかの形で関係しているのではないかと考えられる。

IV-2 試料の体積による吸収線幅の変化

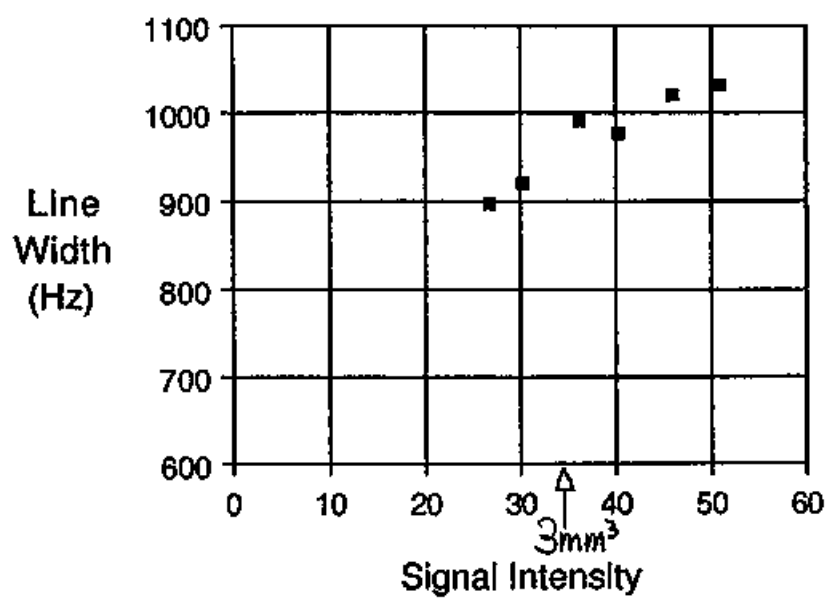
試料の体積に依存して線幅が変化することが確かめるため、試料を溶かして再生長させたりしながらその吸収線幅を測定した。図10(a)に典型的な体積依存性を示す。このデータは $\cos^2\theta = 0.41$ の試料から $T = 0.55 \text{ TN}$, $\omega_c = 600 \text{ kHz}$ の条件下でとられたものである。図の横軸は信号強度であり、その磁区の体積に比例している。図からわかるように体積増加に伴い線幅も単調に増加した。また図10(b)は同時に測定した共振周波数の体積依存性を示している。共振周波数は体積に対して単調に減少したことがわかるであろう。このような体積に依存する線幅と与えるような緩和機構としては固体表面または磁区境界(磁壁)へのスピン拡散や、同じく固体表面または磁壁で起こるマグノン散乱による緩和などのバルク状態では起こらず、有限の系の時に有効と成りうる機構が考えられる。しかしながらこのような機構では試料の磁区の体積が大きくなれば緩和時間が長くなり、すなわち吸収線幅が狭くなるはずである。この事は実験事実と反しており、これらの機構によるものではないことは明らかである。

この線幅および共振周波数の体積依存性は定性的には次のようなモデル(以下)で説明される。試料の固体³Heはスタックとして作られた NMR 室の底に接して

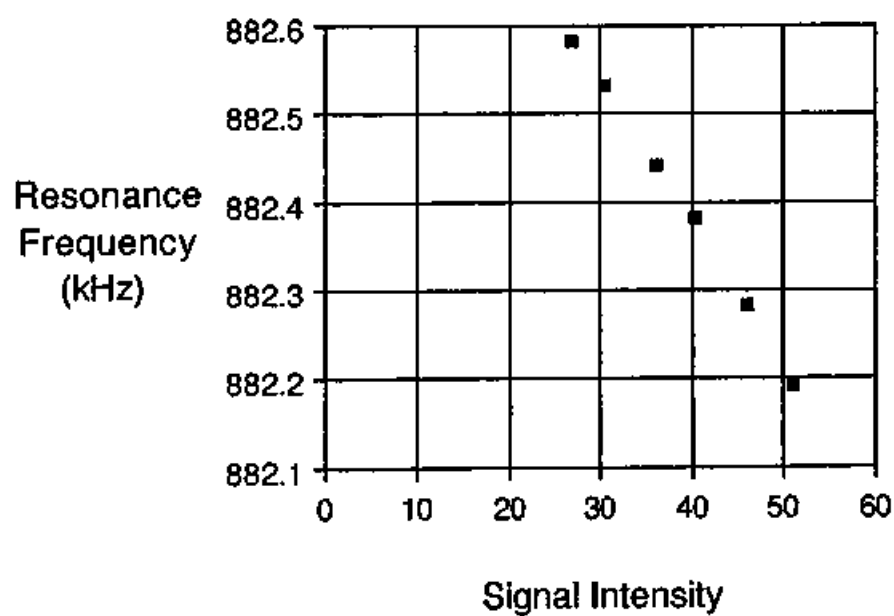


(19)

(a)



(b)



(12) (b)

おかれている。このスライキャストは低温で、低い熱伝導率を持ち長時間にわたる時間依存性熱流入の原因となることが知られている⁽¹¹⁾。このため容器壁は試料そのものより高い温度を持ち、大きな界面熱抵抗を通して小さな熱流が試料へと流入していくことが期待される。この熱流のために固体 $3He$ 内に温度勾配が発生すると反強磁性円波数 ω の温度依存性のために局所的な共鳴円波数が空間分布するようになる。このような共鳴円波数の分布は見かけ上の線幅を作り出すことになる。この見かけ上の線幅は固体の

壁からの長さが長くなるほど(固体の体積が大きくなるほど)固体内の温度差が大きくなる

ため(図11)、広がるという傾向を持ち、

同時に固体の平均温度も上昇するため

共鳴円波数は低下する。Fengら⁽¹²⁾により

測定された固体 $3He$ の熱伝導率のデータを

用いて図10に与えられる体積に依存した

線幅の値を与える熱流の大きさを推定

すると $0.1 \mu W$ のオーダーとなる。この大

さの熱を発生するスライキャストの量を

Schwarzら⁽¹¹⁾によって測定された典型的な値 $10 \mu W/g$ より推定すると $10 mm^3$ となる。

この値は固体 $3He$ そのもの的大さ $3 mm^3$ と比べて同程度であるためこの推定結果

はリ-ズ+7%に相当するものと考えよう。

今回測定された体積に依存する線幅が上記のような外的要因によるものである

なら、真の内部的緩和過程による線幅を得るためには、試料を小さくしてその

効果を除去するか、体積依存性を測定して外挿することにより体積効果を推定

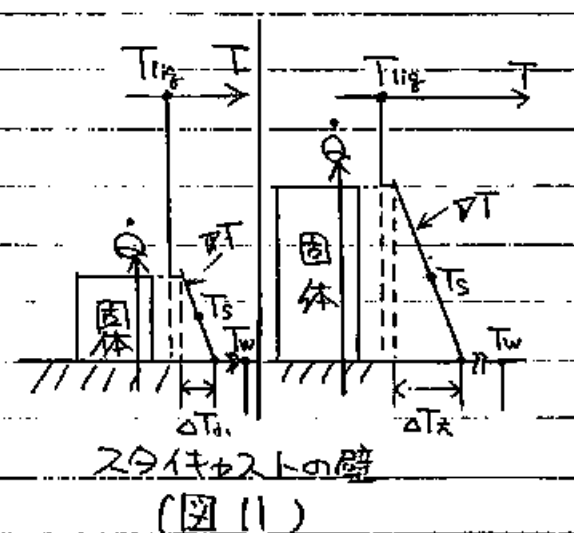
して除去するかしなければならない。後者の方法は実験時間の制約のため不

可能であるので、前者の方法を採用することにした。実際には試料内の各

磁区からの信号が測定磁場範囲内で十分な信号強度を持つように留意

して $3 mm^3$ の結晶体積を選出した。この有限の体積による効果は測定

結果に最大20%の誤差を与えることになる。



IV-3 多重マグノン過程によるスピン緩和の理論⁽¹⁾

スピン波近似が有効であるような反強磁性体ではそのスピン緩和過程は多重マグノン過程により記述されると考えられる。外的な散乱要因のないバルクの系ではエネルギーおよび運動量を保存するため最低次の多重マグノン過程は3-マグノン過程となる。図12(a)は典型的な3-マグノン過程を模式的に示したものである。19ボウ型の2曲線は各々 upper mode, lower mode: 対応したエネルギー分散を表している。NMRにより upper mode が励起された波数 $k=0$, エネルギー $\hbar\omega_+$ のマグノンが分裂し lower mode の波数 $\pm k$, エネルギー $\frac{1}{2}\hbar\omega_+$ のマグノン各1個になる。この lower mode で生成された $\pm k$ のマグノンはすぐに熱的に励起されているマグノンと熱平衡状態になる。このとき $k=0$ のマグノンからの分裂過程が緩和の律速段階となっている。

図12(b)は同じく典型的な4-マグノン過程を模式的に示したものである。upper mode の $k=0$ のマグノンと熱的に励起されている lower mode の $k=0$ のマグノンとが合体し別の upper mode, lower mode 各1個のマグノンへと変化している。この場合も生成したマグノンはすみやかに熱的に励起されているマグノンと熱平衡状態になっているものと考えられる。またなんらかの外的な散乱要因(例えば表面、磁壁等)があれば2-マグノン過程も起こりうる。実際の系ではこれら各過程が競合しており、緩和速度は各過程の緩和速度の逆数和で表される。しかし、高次の多重マグノン過程は数多くの熱的に励起されたマグノンを必要とするため、十分に低い温度では低次の多重マグノン過程により支配されているものと考えてよい。

本見⁽²⁾は低磁場秩序相では3-マグノン過程と4-マグノン過程に支配されていると考え、有効ハミルトニアン⁽³⁾から出発して各過程による緩和速度を計算した。その結果は吸収線幅の形で次のように表される。

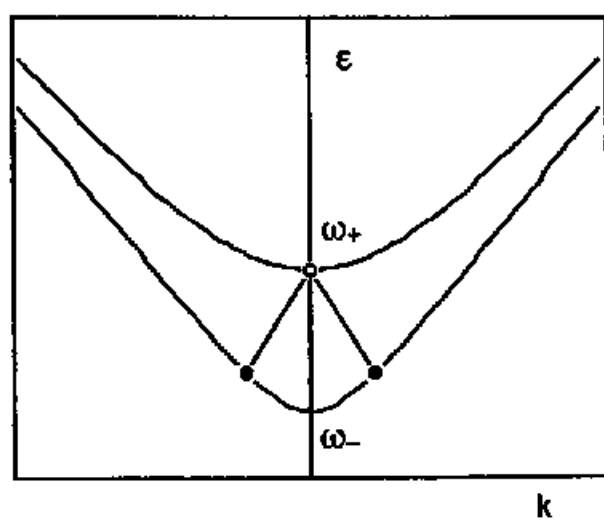
$$\Gamma_+^{(3)} = \frac{v^2}{4\pi^2} \frac{\gamma^2}{\chi} \frac{k_B T}{c^3} \omega_L^2 \frac{1}{\omega_+} \sqrt{\omega_+^2 - 4\omega_-^2} \quad [6]$$

$$\Gamma_-^{(3)} = \frac{v^2}{8\pi^2} \frac{\gamma^2}{\chi} \frac{k_B T}{c^3} \omega_L^2 \frac{\omega_+^3}{\omega_-^2} \frac{\sqrt{\omega_+^2 - 4\omega_-^2}}{\omega_+^2 - 2\omega_-^2} \quad [7]$$

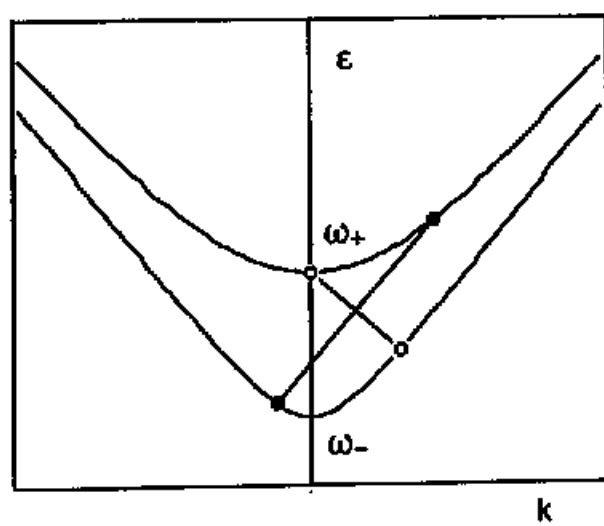
$$\Gamma_+^{(4)} = \frac{1}{2(2\pi)^4} \frac{\gamma^4}{\chi^2} \frac{(k_B T)^3}{\hbar c^6} \left(1 - u^2 \frac{\omega_L^2}{\omega_+^2}\right)^2 \omega_+^2 \left(\frac{2}{3}\pi^2 \ln \frac{k_B T}{\hbar \omega_-} + 0.7\right) \quad [8]$$

$$\Gamma_-^{(4)} = \frac{1}{2(2\pi)^4} \frac{\gamma^4}{\chi^2} \frac{(k_B T)^3}{\hbar c^6} \left(1 - v^2 \frac{\omega_L^2}{\omega_-^2}\right)^2 \omega_-^2 \left(\frac{2}{3}\pi^2 \ln \frac{k_B T}{\hbar \omega_-} + 0.7\right) \quad [9]$$

3 Magnon Process (a)



4 Magnon Process (b)



$$u^2 = \frac{1}{2} \left(1 + \frac{\omega_L^2 + \Omega_0^2 (2\cos^2\theta - 1)}{\sqrt{(\omega_L^2 - \Omega_0^2)^2 + 4\omega_L^2 \Omega_0^2 \cos^2\theta}} \right) \quad [10]$$

$$v^2 = \frac{1}{2} \left(1 - \frac{\omega_L^2 + \Omega_0^2 (2\cos^2\theta - 1)}{\sqrt{(\omega_L^2 - \Omega_0^2)^2 + 4\omega_L^2 \Omega_0^2 \cos^2\theta}} \right) \quad [11]$$

こゝで $+$, $-$ の記号は各々 upper mode, lower mode に対応し、また $\Gamma^{(n)}$ は n -マグノン過程による線幅を意味する。従つて 3, 4-マグノン過程による最終的な線幅はこれらの和

$$\Gamma_{\pm} = \Gamma_{\pm}^{(3)} + \Gamma_{\pm}^{(4)} \quad [12]$$

の形で与えられる。これらの式より以下の数値を使って計算した線幅の磁場変化を図 13 に示す。

$$\chi^{\dagger} = 0.185 \times 10^6 \text{ gauss}^{(13)}$$

$$C = 7.7 \text{ cm/sec}^{(14,15)}$$

$$T_N = 0.93 \text{ mK}^{(16)}$$

$$\gamma = 2.04 \times 10^4 \text{ (gauss} \cdot \text{sec)}^{-1}$$

$$\text{また } \cos^2\theta = 0.2, 0.8$$

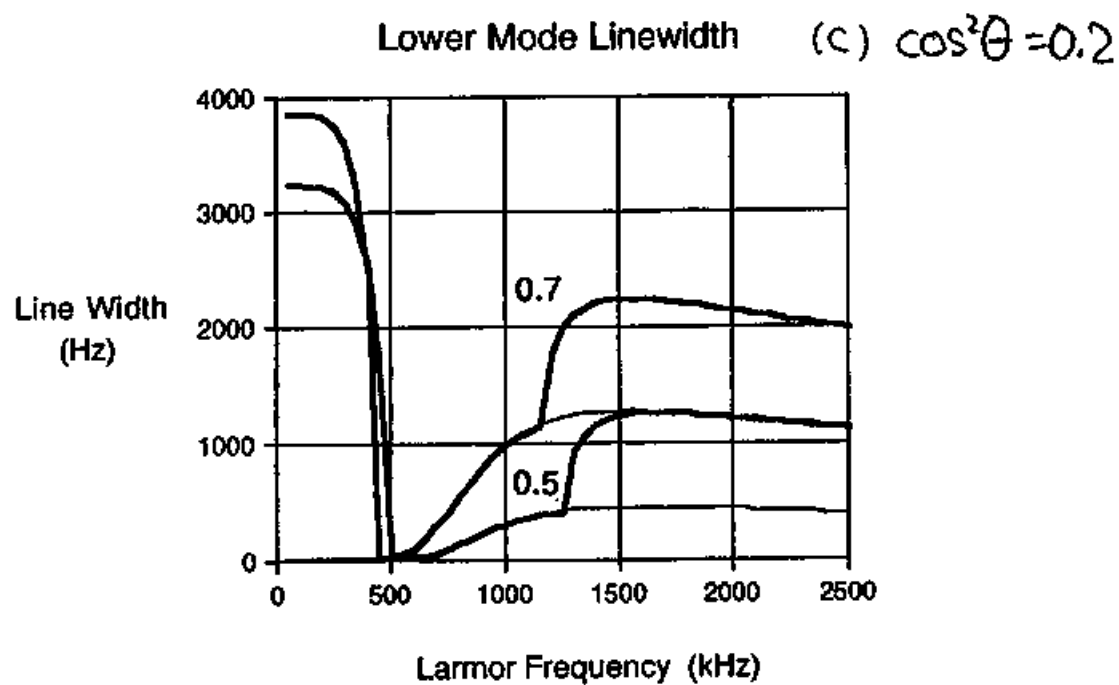
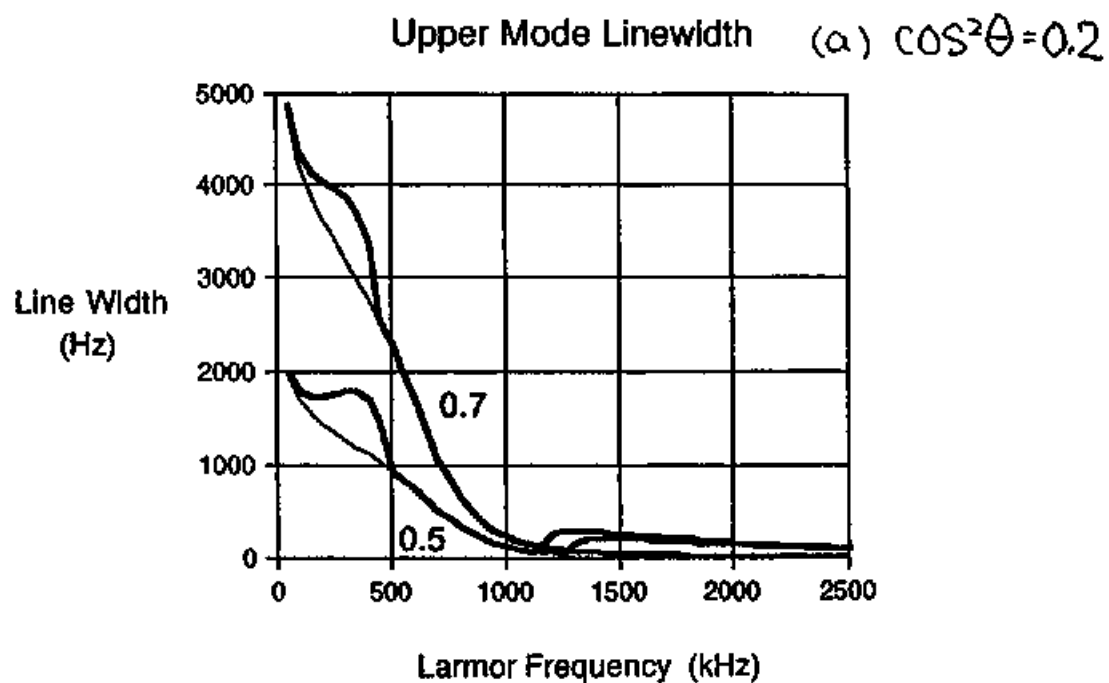
$$\Omega_0^2 = 5.9 \times 10^4 \text{ kHz}^2 \text{ (} T = 0.5 T_N \text{ のとき)}$$

$$= 5.0 \times 10^4 \text{ kHz}^2 \text{ (} T = 0.7 T_N \text{ のとき)}$$

図 13(a) は $\cos^2\theta = 0.2$ の磁区の上モードに対して計算された線幅の磁場変化を示している。図中 0.5, 0.7 は各々 $T = 0.5 T_N, 0.7 T_N$ の温度に対して計算されたものを示している。細線で書かれた曲線は $\Gamma_{+}^{(4)}$ を、太線で書かれた曲線は $\Gamma_{+}^{(3)} + \Gamma_{+}^{(4)}$ を表す。このように upper mode では 4-マグノン過程が主たる寄与をしているが、図からみられるように 3-マグノン過程よりも強い温度依存性を持っているので、さらに低い温度域では 3-マグノン過程が主たる寄与をするようになる。また 3-マグノン過程は $\omega_L \approx \Omega_0$ の中央部では働かす、ある臨界磁場より外側の図 12 部のみにおいて緩和に寄与している。

このことは 3-マグノン過程においてエネルギーを保存するための条件からきている。

図 12(a) より見られるように $\omega_{+} \geq 2\omega_{-}$ でなければ upper mode で励起された $k=0$ のマグノンが分裂して lower mode のマグノン 2 個に変化することはない。従つて $\omega_{+} < 2\omega_{-}$ となるような条件下では 3-マグノン過程は起こらない。この条件 $\omega_{+} < 2\omega_{-}$ は $\cos^2\theta < 0.36$ のときに $\omega_L = \Omega_0$ の近くの磁場領域。



(13 (a), (c))

$$\frac{1}{8}\Delta_0^2[17-25\cos^2\theta-5\sqrt{(1-\cos^2\theta)(9-25\cos^2\theta)}]<\omega_c^2<$$

$$\frac{1}{8}\Delta_0^2[17-25\cos^2\theta+5\sqrt{(1-\cos^2\theta)(9-25\cos^2\theta)}] \quad \text{--- [3] ---}$$

となりたつ。今後この磁場領域の事を3-マグノンの禁止領域と呼ぶ。

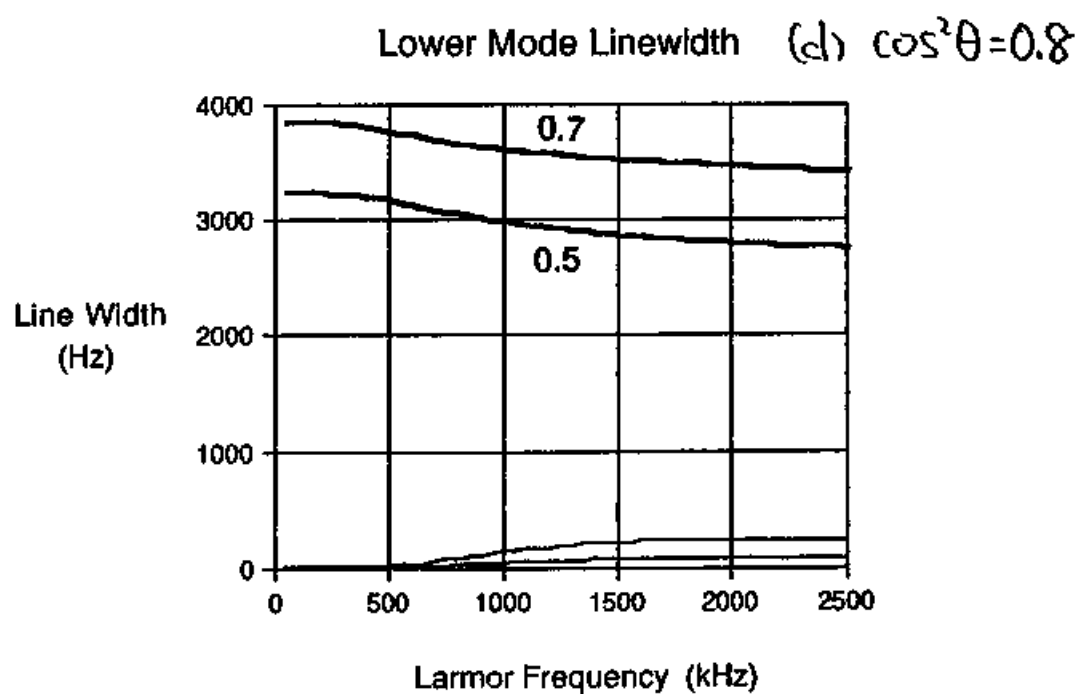
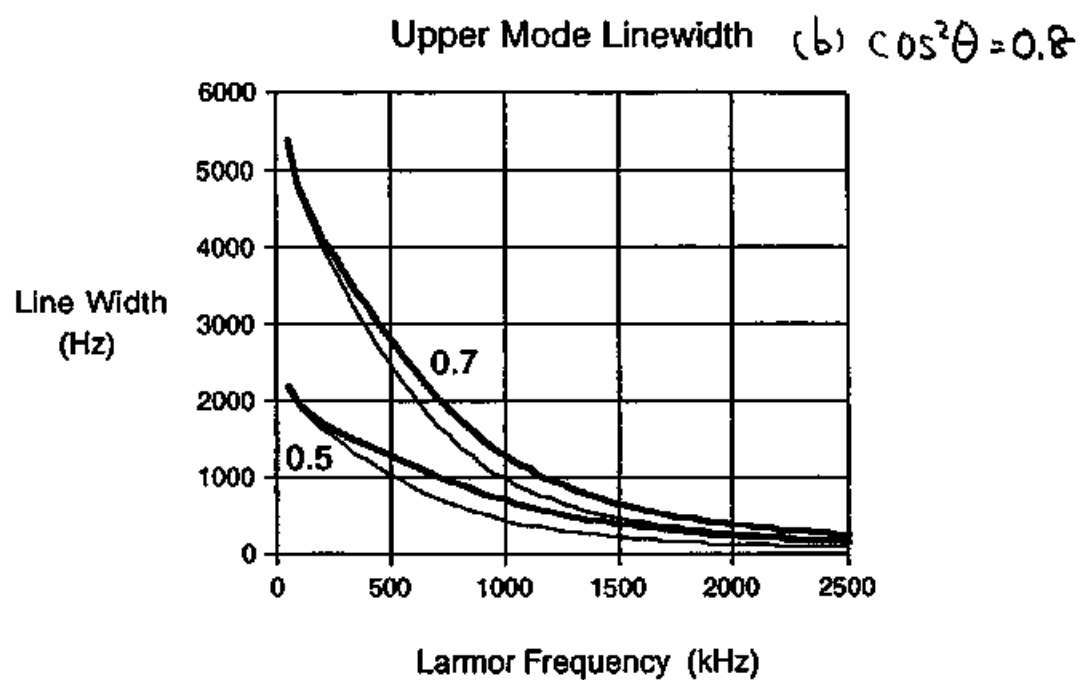
このため $\cos^2\theta < 0.36$ の場合 3-マグノンによる線幅は禁止領域の両側に丘状の磁場依存性を持つ。また実験により測定された線幅は磁場に対してほぼ単調に減少していた。この特徴は4-マグノン過程による線幅の特徴とよく一致している。しかしながら3-マグノン過程による線幅の特徴である禁止領域の外側での丘状の磁場依存性は図9に示した唯一の特例を除いては観測されなかった。また正の温度依存性を持つことは実験結果と一致している。

図13(b)は $\cos^2\theta = 0.8$ の磁区の upper mode に対して計算された線幅の磁場変化を示している。このような大きな $\cos^2\theta$ の磁区に対しては3-マグノン過程には禁止領域がなく 3,4-マグノン過程による合計の線幅もほぼ単調なものとなっている。このような磁場依存性は実験により測定されたものと定性的に一致している。また正の温度依存性を持つ点も実験結果と一致している。

図13(c)は $\cos^2\theta = 0.2$ の磁区の lower mode に対して計算された線幅の磁場変化を示している。upper mode の場合と同様、この場合も3-マグノン過程の禁止領域があり式[3]で表される。この禁止領域の両側では線幅が急激にたがっている。また禁止領域内では4-マグノン過程によって支えられ、線幅は磁場に対して単調に増加する。このような磁場依存性は $\cos^2\theta$ の小さな試料から測定された線幅の磁場依存性と定性的に一致している。また正の温度依存性を持つという点も同様に実験結果と一致している。

図13(d)は $\cos^2\theta = 0.8$ の磁区の lower mode に対して計算された線幅の磁場変化を示している。4-マグノン過程からの寄与は小さく、ほぼ3-マグノン過程により支配されていると考えられる。また3-マグノン過程には禁止領域がなく単調な磁場依存性を与えている。この全磁場領域での比較的大きな線幅の値は共鳴信号を検出することができなかったという実験事実と矛盾しない。

ここまでの記述により示されたように大見らによる3,4-マグノン過程による緩和速度の計算結果は、実験結果と定性的によく一致している。



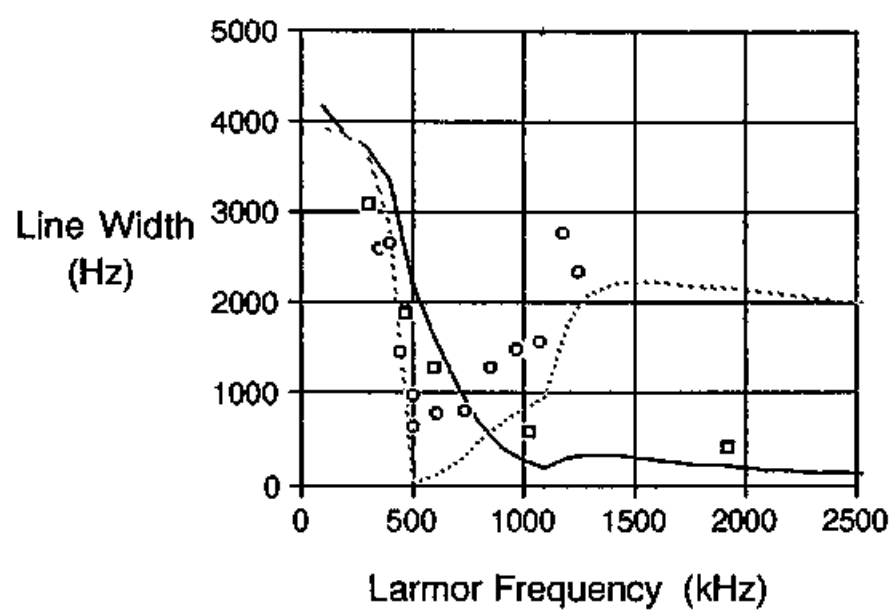
(13 (b) . (d))

IV-4 理論と実験との定量的な比較

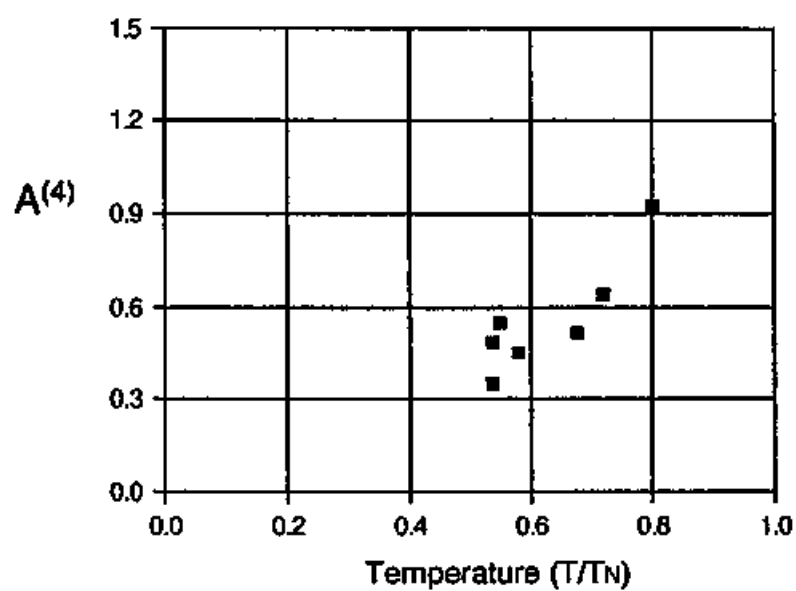
図14は $\cos^2\theta = 0.22$ の試料から $T = 0.68 \text{ K}$ での upper, lower 両モードから取った線幅のデータと大見らの理論による線幅とも同じグラフ上に書いたものである。図中 □ は upper mode からとったデータを、○ は lower mode からとったデータを、連続線は upper mode に対して計算された理論曲線と、点線は lower mode に対して計算された理論曲線とを表している。定性的な振舞いが一致することは前節で述べたがさらに定量的にもかなり良く一致していることが見てとれる。特徴的な線幅の大きさは相対 1 Hz と一致し、また lower mode における禁止領域も実験と理論とでよく一致を示している。しかしながら 500~1000 Hz の磁場領域での upper mode のデータと理論曲線の勾配のわずかな違いや、同じ領域での lower mode のデータと理論曲線の値とのずれなど、実験と理論の間に多少のずれがあることが見てとれる。大見らの理論に含まれるパラメータはすべて他の実験により十分な精度で決定されているので、当実験の結果に合わせてようにパラメータを選ぶことはできない。これでは定量的な比較ができないので、次のような現象論的なパラメータを導入した。

$$\Gamma_{\text{exp}} = A^{(3)} \Gamma^{(3)} + A^{(4)} \Gamma^{(4)} + \Gamma^{(0)} \quad [4]$$

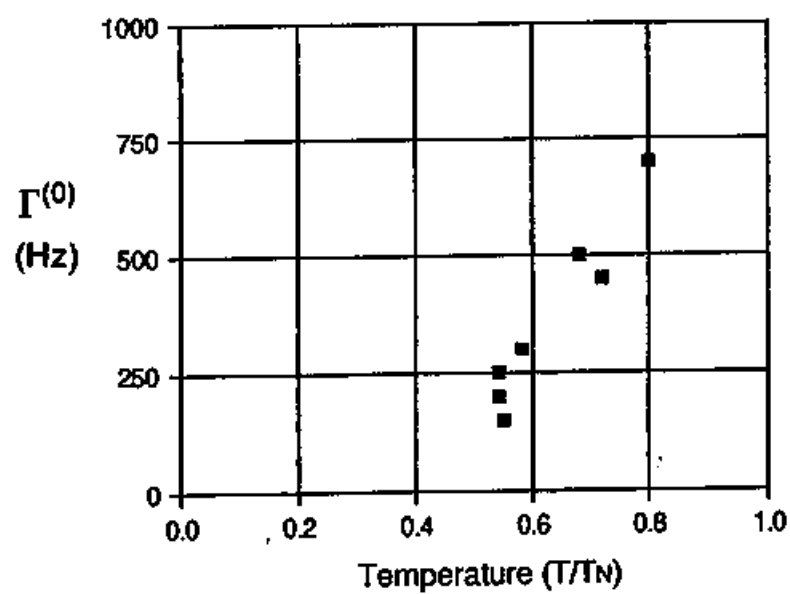
ここで $A^{(3)}, A^{(4)}, \Gamma^{(0)}$ が現象論的なパラメータでいずれも外部磁場に依存しないものとする。この式 [4] を用いて実験結果を説明するような $A^{(3)}, A^{(4)}, \Gamma^{(0)}$ を決定することとした。まず 3-マグソンの禁止領域を持つような試料の upper mode からとった線幅の禁止領域内での値を [4] 式で合わせてみた。このときは当然ながら 3-マグソンの項は不要で $A^{(4)}, \Gamma^{(0)}$ の2つのパラメータでよい。こうして得られた $A^{(4)}, \Gamma^{(0)}$ の値を温度の関数として示しているのが図15である。このように外部磁場に依存しない線幅 $\Gamma^{(0)}$ および 4-マグソン項の大きさの理論とのずれを表すパラメータ $A^{(4)}$ を導入することにより全温度領域で測定された線幅の磁場依存性を説明する事ができた。図からわかるようにいずれのパラメータも正の温度依存性を持つようである。 $A^{(4)}$ は高温側では約 1 であり理論と実験の一致を示しているが、低温側では約 1/2 であり理論が実験値の約 2 倍の線幅を与えていることになる。理論計算に用いたスピン波近似が低温側により正確な答えを与えることを考えあわせれば、むしろ理論が元々 2 倍程度の



(14)(4)



(15(a))



(15(b))

誤差も含んでおり、それを修正すれば低温側で実験と理論が一致し、高温側では実験値が理論値の倍程度になると考えるのが妥当である。

次に3-2ゲジンの禁止領域外での線幅の急激な増加に対して[4]式をあてはめてみた。図16に示すのは $\cos^2\theta = 0.22$ の試料から $T = 0.58 \text{ TN}^2$ とした lower mode の線幅 (図中○) とそれに対する[4]式のフィット (連続曲線) である。ここでフィッティングパラメータとして $A^{(3)} = 1$, $A^{(4)} = 0.5$, $\Gamma^{(0)} = 150 (\text{H})$ を選んだ。図からみられるように禁止領域の低磁場側での線幅の急激な増加はよく説明されている。今回の実験では $A^{(3)}$ の値を各温度で決定できるだけのデータが取れなかったため、今後 $A^{(3)} = 1$ を仮定する。

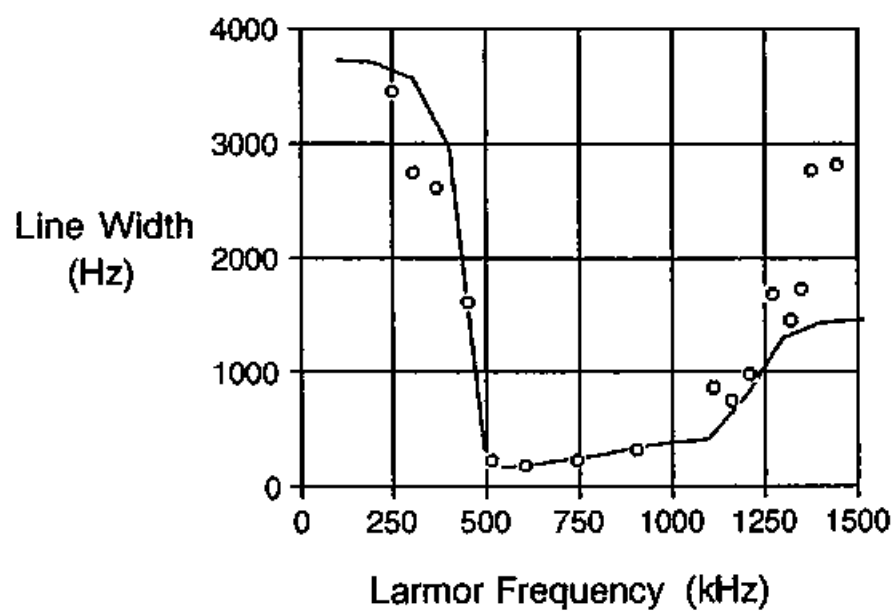
この仮定 $A^{(3)} = 1$ を適用して禁止領域のない試料の upper mode からの線幅に対して[4]式を合わせることにした。upper mode では全体に4-2ゲジン過程の寄与が主たる部分をしめるので、この仮定によりフィットが大きく狂うことはない。ここで定められたパラメータ $A^{(4)}$, $\Gamma^{(0)}$ を温度の関数として図17に示す。このデータは図15に示されたものも含んでいる。図15と比べてデータの散らばりが大きくなったが、同様に2倍程度の大きさのずれの範囲内で実験と理論は一致していると言えよう。

IV-5 議論

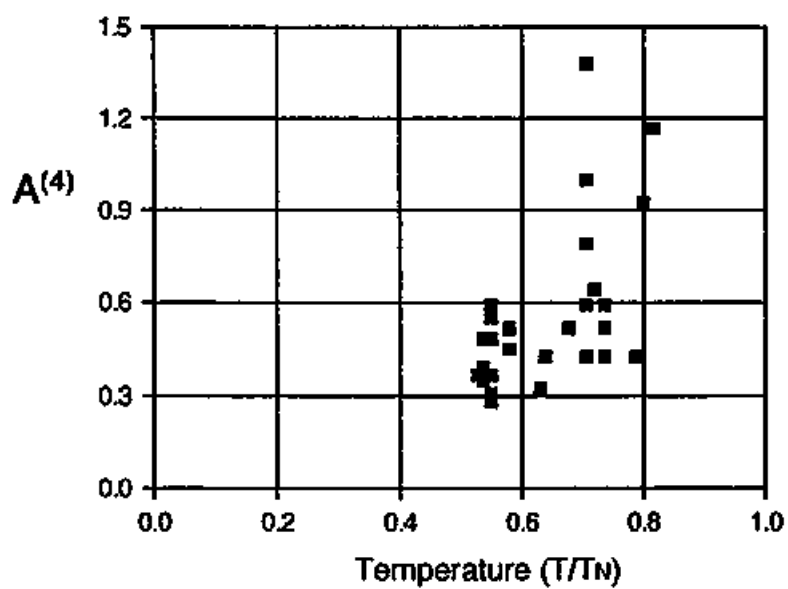
前節でまとめたとおり大見らによる理論は今回の実験結果と定性的および定量的によく一致しているが、磁場依存性の大きさに最大2倍程度のひらきがあり、なお温度依存性も完全には一致していない。このずれの原因についてここでは議論する。

まずIV-2で示した体積依存性の効果である。この効果は温度勾配のような外的な要因によるものと考えられるので有限の体積下で測定された線幅にはこの要因による見かけ上の線幅が混入していることになる。この見かけ上の線幅は周波数シフトの大きさとはほぼ同様の磁場依存性を持つと期待されるのでこの効果を除いた線幅はより緩やかな磁場依存性を持つことになる。したがって実験と理論のずれはますます大きくなる方向である。しかしながら熱伝導度の強い温度依存性により $A^{(4)}$ にみかけ上の正の温度依存性を与えることが期待される。

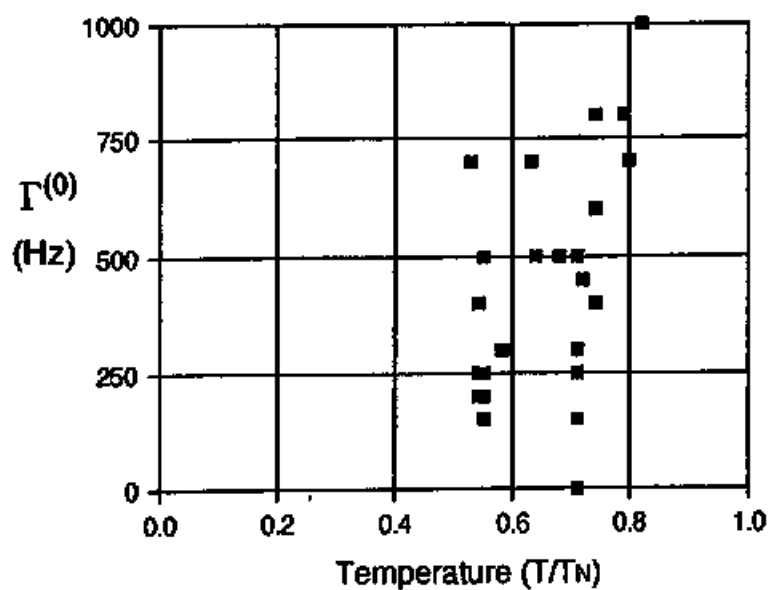
次に反磁場の効果について議論する。一般の形状をした物質の場合反磁場の強度は物質の中で一定にならず、そのため見かけ上の線幅を作り出す事に



(16)



(17(a))



(17(b))

なる。その大きさは最大限に見積って 10^{-4} のみである。この効果により作りだされる見かけ上の線幅を測定した線幅より差し引くと、実験による線幅はより強い磁場依存性を持つことになり、理論と実験のずれは縮まるのである。しかしこの場合、温度依存性は説明することができない。

また大見らの理論では考慮されていない、多重マグノン過程が実際には十分存在しているかも知れない。もし高次のマグノン過程が十分存在すれば、高温側の理論的線幅がより大きくなり、ひいては係数 $A^{(4)}$ は小さくなる。この結果、温度依存性のずれは縮小するものと期待される。しかし全体的に理論による線幅がより大きくなるのであるから、大見らに關しての実験と理論とのずれはより大きくなると言えよう。また Feng⁽¹²⁾ により提唱されているように、平均間隔数 μm 以下の密度で磁気欠陥があるならば、そこでの反射により 2-マグノン過程が有効になる可能性がある。この場合磁場依存性は弱く、現象的に導入した $A^{(4)}$ の原因となる可能性がある。

また大見らによる計算は $S(1)$ による展開の低次項のみをとり、より計算の精度を上げると線幅の値、磁場依存性ともに大幅に変化する可能性がある。

V 磁区構造とその分布

現在までの低磁場秩序相の NMR 研究において作られた固体 ^3He の試料はそのほとんどが 3 種類の磁区を 1 つの結晶中に含んでいた。Feng⁽²⁾ は結晶中の 95% を一つの磁区でしめることができたが、それでも種結晶の中に他の直交する二磁区を持つ試料もある。強磁性体の場合は自発磁化による磁気エネルギーの増大を防ぐため多磁区構造をとっていることが知られているが、自発磁化のない反強磁性体の場合にこのような多磁区構造をとる構局的な理由は考えられない。この低磁場秩序相の結晶の中にどういふ形で複数個の磁区が存在するのかを調べるため簡便化された NMR イーシングの手法を用いて磁区の分布も測定した。

x, y, z の 3 方向の一次の磁場勾配 $\frac{\partial H_z}{\partial x}, \frac{\partial H_z}{\partial y}, \frac{\partial H_z}{\partial z}$ をかけ位置 (x, y, z) にある磁区の信号を観測すれば、その共振周波数 (中心周波数) は

$$\omega + \gamma \left(\frac{\partial H_z}{\partial x} x + \frac{\partial H_z}{\partial y} y + \frac{\partial H_z}{\partial z} z \right) \cdot \frac{\partial \omega}{\partial \omega_L} \quad [5]$$

で与えられる。位置 (x, y, z) のまわりに大きさ (L_x, L_y, L_z) をもてれば吸収線幅は

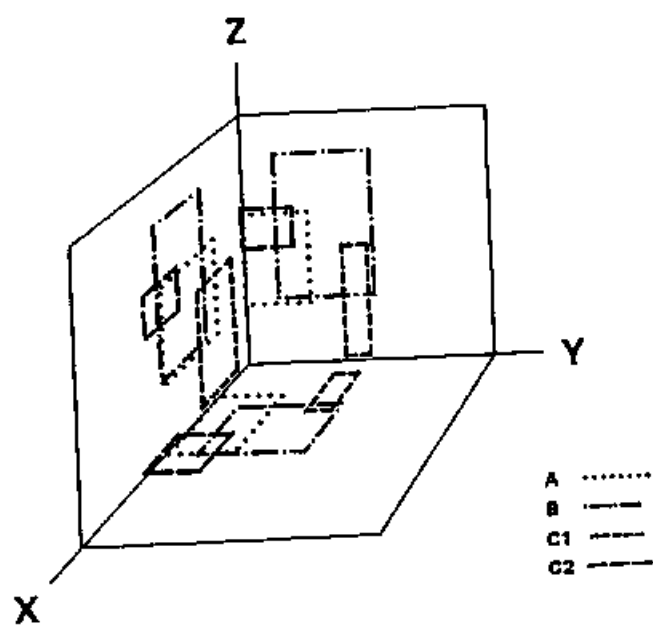
$$\Gamma = \gamma \left(\frac{\partial H_z}{\partial x} L_x + \frac{\partial H_z}{\partial y} L_y + \frac{\partial H_z}{\partial z} L_z \right) \cdot \frac{\partial \omega}{\partial \omega_L} \quad [6]$$

で与えられる。ここで ω, Γ は各々磁場勾配がないときの共振周波数および吸収線幅である。[5], [6] 両式は Dipolar coherence length $\xi_D \sim 10 \text{ nm}$ ⁽³⁾ より十分大きなスケール $(x, y, z), (L_x, L_y, L_z)$ に対して適用できる。ここで磁場勾配の大きさを変えながら共振周波数、吸収線幅を測定すれば (x, y, z) および (L_x, L_y, L_z) を得ることが出来る。

Ⅲ-3 で述べたように生成した直後の固体 ^3He から 3 種類の磁区による信号が得られるのであるが、その各々が多ピーク構造をとっている事がよくあった。その典型的な例が図 18 の C1, C2 と示されている。このような多ピーク構造の固体を溶かして小さくすることによりピークの数を減らすことができ、一度消失したピークは再び固体を大きくしても二度と出現しなかった。この多ピーク構造の起元を調べるため図 18 のような 3 種類の磁区 A, B, C を持ち、そのうちの 1 種 C だけが 2 つのピーク C1, C2 よりなる試料を用いて磁区の空間分布も測定した。上述の方法により求めた磁区の空間配置図を図 19 に示す。この図で $x-y$ 面に書かれた長方形は磁区の正確な形状ではなく各辺の長さが



(图18)



(图19)

各々の方向 (X, Y) の平均の長さ (L_x, L_y) を表している。またこの長方形の中心の位置は磁区の中の位置 (X, Y) を表しており、3平面 $(X-Y, Y-Z, Z-X)$ への射影を組み合わせることにより各磁区の位置、大きさを知ることが出来る。

図から明らかなように各磁区の中の位置はお互いにずれており、またその大きさは結晶全体の大まかと同じである。このことより結晶内には結晶と同程度の大きさ (オーダーとして $1 \mu\text{m}^3$) の磁区が互いに接して共存していることがわかる。

この結果より強磁性体の多磁区構造の場合のように小さな磁区が数多く合っているのではないことがわかる。(もし微小磁区が混在するのなら各磁区の中心位置は一致するはずである。) また、信号 C1, C2 に与える磁区は空間的に離れた位置に存在し、おかつ磁区 A, B をはさんで一つの結晶内に存在することがわかる。このような磁区配置は固体を溶かすことにより消失したピークが二度と復活しないという事実を支持するものである。さて、他磁区をはさんで存在する同種の磁区2個が、少くも異なる共振周波数を与えるという事は磁歪による格子の歪みが発生しているとすれば説明できる。他磁場秩序相は一軸異方性を持つ反強磁性体であるから異方軸 \hat{z} の方向とそれに垂直な方向とでは格子定数が違っていることが考えられる。このような状況下では、他に他の磁区 E はおらず、2つの同種磁区の異方軸が互いに少くも少し違った方向を向いていることがありうる。今回の C1, C2 の場合では $\cos^2 \theta$ の値にして 2×10^{-3} 程度のずれがあれば C1, C2 のピーク周波数の差を説明できる。このような $\cos^2 \theta$ のずれを与える格子の歪みの大きさは $|C/a - 1| = 10^{-3}$ と計算される。ここで C は \hat{z} 方向の格子定数、a は \hat{z} に垂直した方向の格子定数である。なお、この測定結果だけからでは $C > a$ であるのか、その逆であるのかは残念ながら決定できない。このような格子の歪みの大きさは弾性エネルギーと交換エネルギーとのバランスから決まると考えられ、弾性エネルギーの歪み $\varepsilon = |C/a - 1|$ による変化分

$$\frac{1}{2} \left(\frac{m_3}{2} \omega_0^2 \right) (a\varepsilon)^2 \quad [17]$$

と、非常に大きなグライベン定数 $\gamma_G \approx 18$ をもつ交換エネルギー J ($\propto V^{1/3}$) の変化分

$$3\gamma_G \varepsilon J \quad [18]$$

により評価すれば、 $m_3 = 5 \times 10^{-24} \text{ g}$, $\omega_0 = 2 \times 10^{12} \text{ (rad/sec)}$, $a = 3 \times 10^{-8} \text{ (cm)}$, $J = 1 \text{ meV} \sim 10^{-3} \text{ ke (erg)}$ を用いて $\varepsilon \approx 10^{-3}$ を得る。この値は実験より推定される値とよく一致しており、固体 MnO_2 中で実際にこのような格子の歪み

が起きているのではないかと考えられる。

この歪みに関連して次のような実験を行った。 10^3 にもわたる大きな格子の歪みが
あるのであれば、磁区ごとの接合面(磁壁)の付近で著しい格子の歪みを生ずる
可能性がある。(一対一の場合は希に接合することが可能であるが、多数個
の磁区が入り混っている場合はどこかで破壊をきたすことになる。)このような
形の歪みが種結晶の間隙で既に存在していたなら、溶かしたり再結晶させたり
することによって歪みを除去することは極めて困難であると考えられる。またこの歪みが
影響して多磁区構造を形成することになるかも知れない。そこで、高磁場秩序相
の状態を NMR イメージングの手法により磁区の配置を調べた。試料に
転移磁場以上の強度の外部磁場をかけ、全体を高磁場秩序相の状態に
してから再び元の磁場まで戻して磁区分布を調べた。その結果、高磁場
相になる前後の磁区の分布は全く異なっていることがわかった。これより結晶
内に残留する歪みが多磁区構造を支持しているのではないと考えられる。

多磁区構造の原因としてこの歪み以外の可能性としてあげられるのは、液体
との界面がある。液体 ^3He と固体 ^3He はその境界部で頻繁に粒子交換を
行っていると考えられる。このため、固液界面の方向と固体表面での異方性軸の
方向との間に何らかの関連を持つことが考えられる。このような状況下では
ほぼ全方向に自由表面を持つ固体は必然的に多磁区構造をとることにな
ると思われる。このことは細長いチャンネルの中で、擬一次元的に結晶を生長
させることにより、全体積中の 95% を一磁区にしめることに成功した Feng ⁽¹⁾ の例
とも関連しているかも知れない。この多磁区構造の原因については今後の研究
が期待される。

VI 反強磁性周波数 Ω_0 の磁場依存性とネガティブシフト

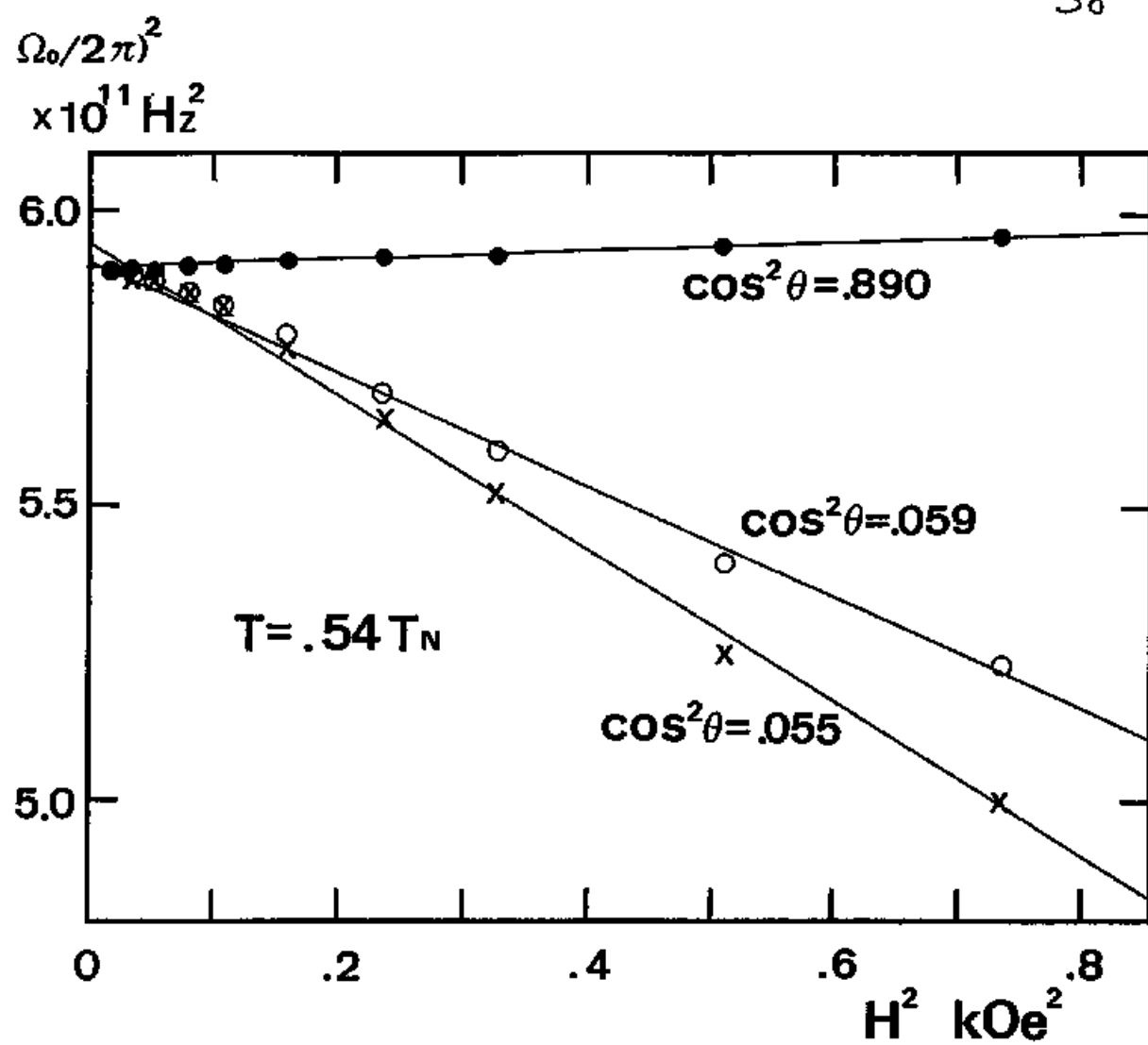
OCF方程式の微分振動解である式[5]は共鳴周波数の外部磁場依存性を磁場によらない Ω_0^2 , $\cos^2\theta$ を用いて説明することができた⁽¹⁾。しかし測定精度を上げていくと実験で測定したデータセット(ω_L , ω)に対するフィットがシステムティックなずれを示すことがわかった。 $\cos^2\theta$ が磁場に依存して変化するとは考えにくいので Ω_0^2 に磁場依存性を持たせることによりこのフィットのずれを救うことにした。Osheroff⁽²⁾が特別な試料に対して報告しているように Ω_0^2 が式[5]のような磁場依存性を持つと考えると実験結果をうまく説明できることがわかった。

$$\Omega_0^2(H) = \Omega_0^2(0) (1 + \alpha H^2) \quad [9]$$

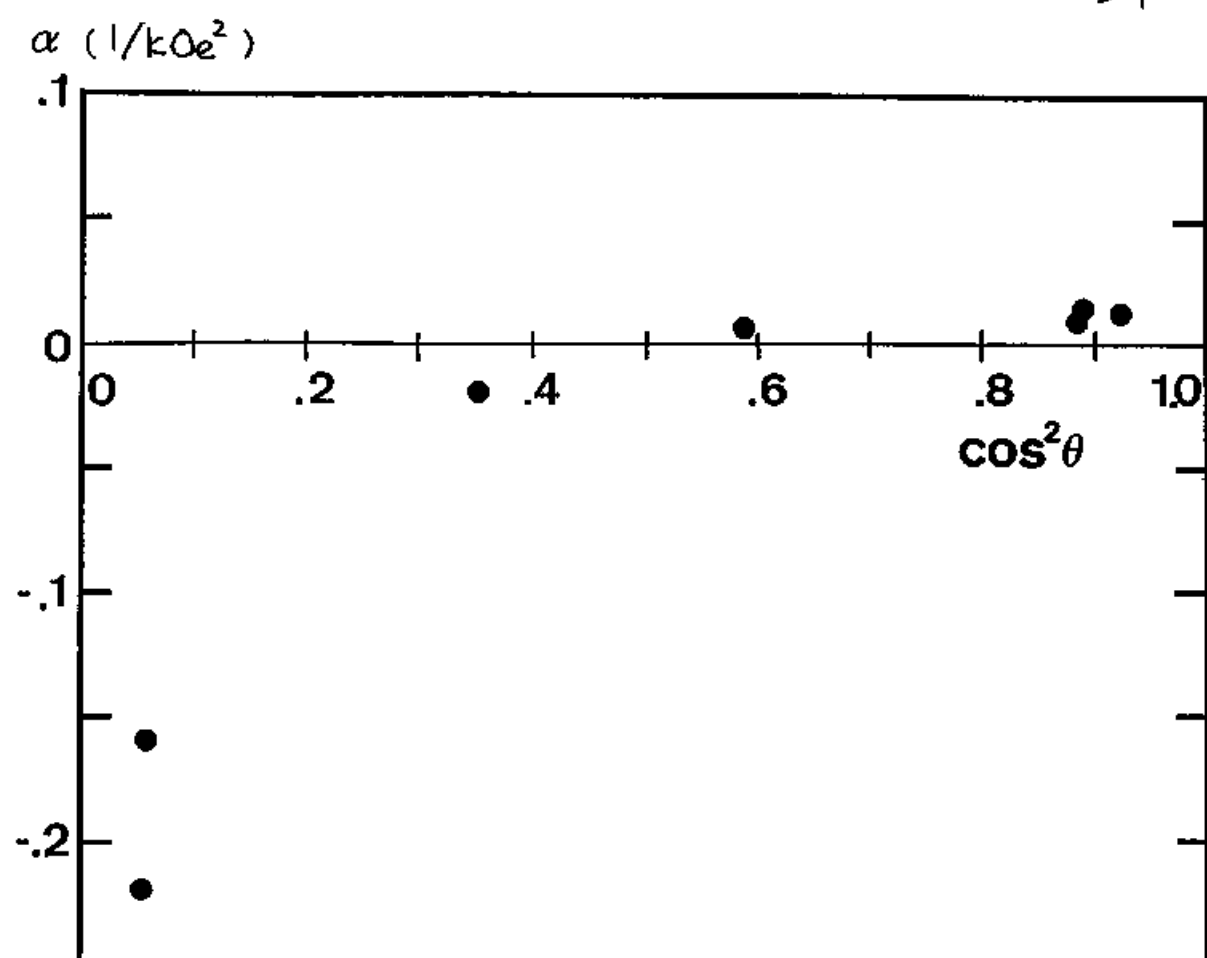
ここで $\Omega_0^2(H)$ は磁場 H のときの Ω_0^2 を表し α は H^2 項の係数である。式[5]の Ω_0^2 を式[9]の $\Omega_0^2(H)$ でおきかえてデータセット(ω_L , ω)に対してフィットしてみると[5]だけのときと比べてより精密良くあわせることができた。図20にある試料からとったデータに対するフィットの結果を示す。このように $H < 1 \text{ kOe}$ の磁場領域からとったデータは[9]式の磁場依存性を導入することによりよく説明されている。図21にこのように決められた係数 α を $\cos^2\theta$ の関数として示す。 $(T = 0.54 \text{ T})$ 係数 α は $\cos^2\theta \approx 1$ のときは $+2 \times 10^{-2} (1/\text{kOe}^2)$ なる値をとるのであるが $\cos^2\theta \approx 0.05$ では $-2 \times 10^{-1} (1/\text{kOe}^2)$ と非常に大きな負の値をとっている。この $-2 \times 10^{-1} (1/\text{kOe}^2)$ という値はこのまわ外挿すれば $H = 0$ では $\Omega_0^2(H) < 0$ なる値を与えることを意味する。 $\Omega_0^2(H)$ は双極子エネルギーの大きさを与えるパラメータなので $\Omega_0^2 < 0$ であるからたちにおかしいという事にならないが $\Omega_0^2 = 0$ となる磁場を境に双極子エネルギーの符号が変わるならそれにはない平衡状態に変化が表れるはずである。このような異常は現在までのところ実験的には発見されていないので、この関数形[9]によるフィットは $H > 1 \text{ kOe}$ の磁場領域でいすれ破綻をきたすことが期待される。

このような反強磁性周波数 Ω_0 の磁場依存性については岩橋ら⁽³⁾による議論があるが、有限磁場下でのオグーパラメータの大きさ(副格子磁化の大きさ)など理論的または実験的に求まっていない量を含んでいるので直接比べることはできない。しかしながら彼らの計算でも Ω_0^2 の磁場依存性は[9]式のような形になることを支持している。

次にB1の試料から観測されたネガティブシフトを示しているデータを図22に示す。upper modeでは[5]式によれば外部磁場 ω_L より高い共鳴周



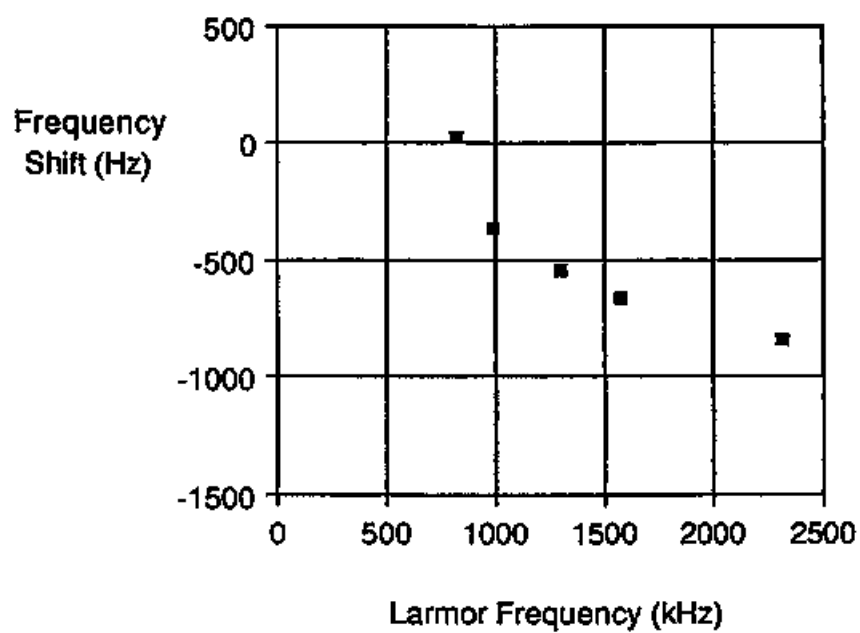
(20)



(图 21)

波数 ω を持つこととなる。すなわち $\omega - \omega_L > 0$ となっている。しかしながら
図22に示された $\cos^2 \theta \approx 10^3$, $T = 0.55 \text{ K}$ よりとられたデータは
 $\omega_L > 800 \text{ kHz}$ の磁場領域で明らかに $\omega - \omega_L < 0$ となっている。このよ
うな周波数シフトをネガティブシフトといい、超流動 ^3He などでも特殊な
条件下で観測されている。しかしながらこのような周波数シフトは熱平衡状
態である双極子ポテンシャルの極小状態のまわりの微小振動からでは
説明をすることができず、今回観測されたネガティブシフトは何か別の起源
を持っているのではないかと考えられる。ネガティブシフトを与える起源の一つの
候補としては大きな帯磁率に基づく反磁場が考えられる。他の実験より
測定されている帯磁率⁽⁴⁾の値より計算した反磁場による影響は、最大も
 $-7 \times 10^{-5} \omega_L$ であり、図22で示されているデータより十分小さい。従って
反磁場はネガティブシフトの起源ではあり得ない。図22のデータによると
高磁場側ではシフト量が約 -1 kHz で飽和するように見える。このことは
むしろ磁場によらず一定のネガティブシフトを与えるような1次の項がOCE方程式
の双極子項の他に存在し、双極子項による正のシフトが小さくなる高磁場
小 $\cos^2 \theta$ の条件下でネガティブシフトとして出現するのではないかと示唆し
ているようである。また、前述の $\Omega_B(H)$ の磁場依存項の係数 α の $\cos^2 \theta \sim 0$
時の異常に大きな値もこのネガティブシフトを与える項の影響を α に押し込
めたための見かけ上の値で、より高磁場側では当然ながら Ω_B によるシフトは
破綻するものと期待される。このネガティブシフトの問題に関してもより
高磁場側での精細な測定による研究の発展が囑望されるところである。

41



(22)

VII まとめ

固体 FeCl_2 の低磁場秩序相でのスピン緩和機構について cw-NMRにより吸収線幅の外部磁場、温度、異方軸 \hat{z} の方向による変化を測定することにより研究した。これらの結果は大見らによる多重マグノン過程による緩和速度の計算結果と定性的および定量的によく一致を示したので、低磁場秩序相でのスピン緩和は多重マグノン過程、とりわけ 3-マグノン過程および 4-マグノン過程により支配されているものと推定される。実験と理論とのよい一致をみるためには外部磁場に依存しない緩和 Γ^0 を現象論的に導入する必要があったが、この緩和は外的な理由によるみかけ上の緩和や大見らの議論に含まれていない多重マグノン過程による緩和などの効果によってみかけ上現れているものではないかと考えられる。

また NMR イージングの手法を用いることにより磁区分布を調べた。一つの磁区は結晶全体と同程度の大きさを持っており、一結晶がたがたか数個の磁区よりなっていることがわかった。また吸収信号に現れる多ピーク構造を調べることにより結晶格子が異方的に歪んでいる可能性があることを指摘した。この歪みの大きさは $|c/a - 1| = 10^{-3}$ と比較的大きな値であるが、低いデバイ温度 (17K) と大きな交換相互作用 ($\sim 1\text{ meV}$) とから推定される歪の大きさとして一致していた。また対称性から歪みの方向は異方軸 \hat{z} の方向になると考えられるが、その方向に伸び縮みするか縮むのかは今回の研究では明らかになることができなかった。

さらに反強磁性周波数 ω_m の磁場依存性を測定し、 $\cos^2\theta$ の値が0に近いときに異常に大きな負の磁場自乗依存性を発見した。この依存性はより高磁場側では破綻するものと推定される。(このことは実験的に確かめることはできなかった。) また特別な試料から測定した共振周波数が upper mode で外部磁場より低い値にずれている(ネガティブシフト)ことを示した。この周波数シフトは高磁場側で約 -1 kH_2 の値で飽和するものと見られる。これらの結果より OCF 方程式には含まれていない別種の $\langle H^2 \rangle$ 項が存在する可能性を示した。 $\cos^2\theta = 0$ の領域での ω_m の異常に大きな負の磁場自乗依存性はこの $\langle H^2 \rangle$ 項による周波数のずれをとり込んだために出てきた可能性がある。

謝辞

長年にわたり数々の助言を下さるゝと同時に時には叱咤激励して下さいました平井章助教授、水崎隆雄助教授に心から感謝いたします。また理論的な側面からの数々の議論を通して私を導いて下さった恒藤敏彦教授、大見哲巨助教授、坪田誠助教授に深謝いたします。実験装置の運転に必要な極めて大量の液体ヘリウムを定常的に供給して下さいました理学部化学教室、極低温研究室の西下博紹さん、春日昇さんには最大限の謝辞を送りたいと思います。また長期間にわたる実験とともに行ってきた平井研究室の大学院生、色川浩二さん、原義博さん、松下琢さんには最大級の労いとともに感謝の気持ちを送りたいと思います。実験装置の作成にあたり数々の助言とご協力をいただいた、春日功さん、知見宇さん、木村郁夫さん、そして吉野喜造さんに感謝いたします。また最後の2年半の間職員として働かせていただきながら自由に研究することをご許可下さった極低温研究室の皆様、に感謝いたします。また新参者の私を心良く受け入れて下さった化学教室の皆様方にも感謝いたします。最後に7年半にわたる研究生生活の中の私の精神の健康を支えて下さった数多くの飲み友達に心から感謝したいと思います。

参考文献

- (1) D.D. Osheroff, M.C. Cross and D.S. Fisher, Phys. Rev. Lett. 24 (1980) 792.
- (2) A. Benoit, J. Bossy, J. Flouquet and J. Schweizer, J. Physique Lett. 46 (1985) L923.
- (3) T. Kusumoto, O. Ishikawa, T. Mizusaki and A. Hira, J. Low Temp. Phys. 59 (1985) 269.
- (4) M. Tsubota and T. Tsuneto, Proceedings of LT-17 (1984) 241.
- (5) M. Tsubota, Prog. Theor. Phys. 79 (1988) 47.
- (6) T. Ohmi, M. Tsubota and T. Tsuneto, Prog. Theor. Phys. 73 (1985) 1075.
- (7) M. Tsubota, T. Ohmi and T. Tsuneto, Prog. Theor. Phys. 76 (1986) 222.
- (8) T. Ohmi and M. Tsubota, preprint (1990).
- (9) Scycast 1266 は(株)ウレ-ス 鉛筆の製品である。
- (10) TI-5031 は(株)東シの製品であり 低温で低い熱伝導度 $K = 1.5 \times 10^{-2} T^{1/2}$ (W/m.K) を持つ。
- (11) M. Schwark, F. Pobell, M. Kubota and R.M. Mueller, J. Low Temp. Phys. 58 (1985) 171.
- (12) Y.P. Feng, P. Schiffer, J. Mihalism and D.D. Osheroff, preprint (1990).
- (13) D.D. Osheroff, H. Godfrin and R. Ruel, Phys. Rev. Lett. 58 (1987) 2458.
- (14) D.D. Osheroff and C. Yu, Phys. Lett. A77 (1980) 458.
- (15) D.S. Greywall and P.A. Bush, Phys. Rev. B36 (1987) 6853.
- (16) D.S. Greywall, Phys. Rev. B33 (1986) 7520.
- (17) K. Iwahashi and Y. Masuda, Prog. Theor. Phys. 49 (1980) 1784.